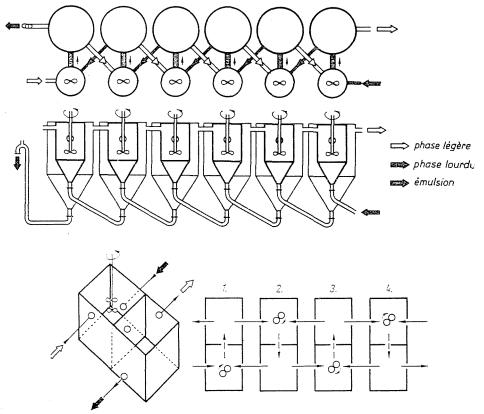
LES QUESTIONS TECHNIQUES DE L'EXTRACTEUR DIT MÉLANGEUR-DÉCANTEUR – L'HOMOGÉNÉITÉ ET L'EFFICACITÉ DU MÉLANGEAGE

Par

K. Tettamanti et G. Havas

Chaire de Génie Chimique, Université Polytechnique, Budapest (Reçu le 5 juin 1973)

On peut dire que le type d'extracteur appelé mélangeur-décanteur (fig. 1) a été à la mode dans les années cinquante, tandis que la colonne à disques rotating lui a été préféré dans les années soixante. Nous pensons que chacun de ces deux types a son rôle, sa place ou son domaine d'emploi selon les conditions d'utilisation, selon le produit à extraire et selon le couple de solvants employés.



 $Fig.\ 1a.$ La batterie d'extracteur mélangeur-décanteur de 6-étages; 1b. L'extracteur mélangeur-décanteur «box-type»

Pour faire fonctionner convenablement le mélangeur-décanteur, il faut résoudre trois problèmes plus techniques que scientifiques:

- 1° Emulsification efficace
- 2° Démulsification suffisamment rapide
- 3° Quelques problèmes d'hydrodynamique qui en apparence sont insignifiants, mais qui sont essentiels pour pouvoir faire fonctionner l'équipement.

Le fonctionnement de l'extracteur dit mélangeur-décanteur — Le rôle de l'émulsification

Dans la batterie, les deux solutions s'écoulent à contre-courant successivement à travers un mélangeur puis un décanteur (fig. 2).

Ce sont les différences de hauteur hydrostatique dans chaque cuve, dues à l'inégalité des masses volumiques des solvants et des émulsions, qui induisent l'écoulement à contre-courant des deux phases.

La condition nécessaire pour l'écoulement de la phase légère est la suivante (voir figure 2):

$$L_{s} > z_{\delta} > \frac{\gamma_{B}}{\delta_{s}} \cdot L_{s} \tag{1}$$

et pour la phase lourde:

$$0 < z_i < \frac{\gamma_A - \delta_i}{\gamma_A - \gamma_B} \cdot L_i \tag{2}$$

On constate donc que la masse volumique de l'émulsion (δ) assure l'écoulement souhaité des deux phases à contre-sens. On doit donc s'assurer que le mélangeage est suffisant pour produire une émulsion convenable aussi

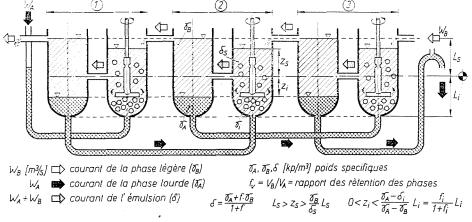


Fig. 2. L'extracteur mélangeur-décanteur

bien dans la partie inférieur (δ_i) que dans la partie supérieure (δ_s) du mélangeur. Autant que possible, l'émulsion doit être approximativement homogène, autrement la partie supérieure ne peut pas être assez émulsifiée, ce qui empècherait l'écoulement de la phase légère.

Le fonctionnement de la batterie est donc assuré par l'équilibre hydrostatique entre l'émulsion et les phases séparées. Ainsi on peut faire fonctionner une batterie avec une grande sécurité même si le rapport des débits des phases est assez différent de l'unité: P. e.

$$5 > f_W$$
 ou $f_W > 1/5$

avec

$$f_w = rac{W_B({
m kg/h})}{W_A({
m kg/h})}$$
 le rapport des débits massiques des phases

ou

$$f_{W}=rac{W_{B}(\mathbf{m}^{3}/\mathbf{h})}{W_{A}(\mathbf{m}^{3}/\mathbf{h})}$$
 le rapport des débits volumiques des phases.

On doit faire un distinction très nette entre «le rapport des débits des phases» défini précédemment et ce qu'on appelle «rapport des rétentions des phases» dans le décanteur et le mélangeur. Ce rapport est défini par:

$$f_Q = \frac{Q_B(\log B)}{Q_A(\log A)}$$

- (rapport ou proportion des masses) ou

$$f_V = \frac{V_B(m^3 B)}{V_A(m^3 A)}$$

- (rapport ou proportion des volumes)

Ces proportions de rétention définissent en particulier le poids spécifique de l'émulsion:

$$\gamma_A + f_V \cdot \gamma_B = (1 + f_V) \cdot \delta$$

ou

$$\gamma_A + f_Q \cdot \gamma_A = \left(1 + f_Q \frac{\gamma_A}{\gamma_B}\right) \cdot \delta.$$

Le rapport des débits est un paramètre que l'on peut fixer tandis que la proportion de rétention est tributaire des conditions hydrostatiques et les valeurs numériques des deux rapports diffèrent en général, sauf au point de soutirage de l'émulsion dans le mélangeur vers le milieu des récipients ou par auto-régulation ces deux valeurs doivent être forcément identiques. La batterie peut être utilisée avec des grands rapports de débit qui dépassent même largement les limites 1/5. Par exemple, on établit un court-circuit entre le mélangeur et son décanteur, dans la partie inférieure si c'est le débit de la phase légère qui est en excès et dans la partie supérieure dans le cas contraire [1].

Après avoir constaté que la condition hydrostatique mentionnée ci-dessus, c'est-à-dire une émulsification convenable, est nécessaire pour le fonctionnement de l'équipement, nous devons aussi nous assurer qu'elle est également suffisante. Cela veut dire que toute perturbation hydrodynamique dans un écoulement inhérent à un phénomène hydrostatique est dangereuse et doit être éliminée.

Le problème se pose si on utilise des pompes pour faire circuler les phases. Les effets hydrodynamiques dus à l'agitateur placé dans le mélangeur peuvent ainsi induire un effet qui se superpose à l'écoulement primaire crée par l'hydrostatique et ces effets peuvent troubler et même parfois entraver l'écoulement des deux phases.

L'agitateur utilisé dans notre extracteur doit donc produire une émulsion presque homogène tout en évitant de produire tout effet hydrodynamique (pression ou succion, aspiration).

Le décanteur

Le facteur qui limite le fonctionnement de la plupart des extracteurs est la vitesse de démulsification: en effet, si on augmente le débit, on atteint le point d'entraînement. L'avantage du mélangeur-décanteur consiste en premier lieu en ce que les temps de séjour des phases dans le mélangeur et dans le décanteur sont tout à fait indépendants l'un de l'autre. Puisque l'équilibre de distribution de chaque système peut être atteint en une minute, on peut déterminer simplement la taille d'un mélangeur en faisant intervenir la somme des débits des deux solvants. Au contraire, le temps de séjour dans le décanteur doit être déterminé par des essais de laboratoire. Nous avons constaté expérimentalement qu'il est de 3 à 8 minutes. Il est intéressant de signaler qu'il se produit une émulsion difficilement séparable si les bords de l'agitateur ne sont pas tout à fait polis.

Le choix de l'agitateur

A notre connaissance, les études reportées dans la littérature ne se sont pas préoccupées de l'influence de la forme de l'agitateur et la vitesse de rotation. Parfois même, certaines idées erronnées sont énoncées, par exemple que la consommation d'énergie du moteur est responsable du fonctionnement convenable de l'équipement. Au contraire, nous avons montré que pour assurer

le meilleur fonctionnement de l'appareil, on doit éliminer par tous les moyens tous les effets secondaires de l'agitateur et surtout ceux qui sont responsables d'une consommation de l'énergie accrue de façon superfétatoire.

En d'autres termes, il nous faut faire la distinction entre agitation et mélangeage. L'agitation n'est qu'un mouvement horizontal causé directement par une simple pale ou bien par un agitateur en forme d'ancre, tout les deux tournant à faible vitesse.

Par le mot mélangeage, nous entendons toujours un mouvement vertical du liquide.

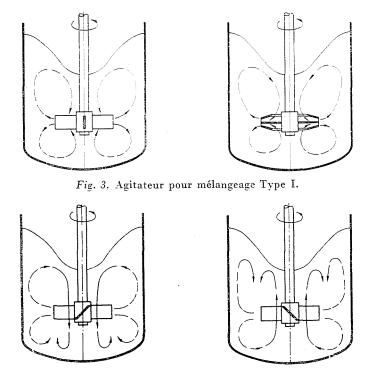


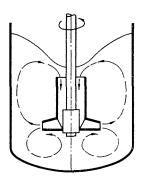
Fig. 4. Agitateur pour mélangeage Type II.

Ce mouvement vertical peut être produit:

- 1. Soit par de simples agitateurs tournant à vitesse élevée. (Agitateurs pour mélangeage, type I [fig. 3].) Ici le mouvement vertical nécessaire pour le mélangeage des phases n'est qu'un effet secondaire; le mouvement horizontal primaire crée une pression centrifuge au niveau de la pale, et cette pression induit des courants dirigés vers le haut et vers le fond du récipient.
- 2. Soit par des types propellers par exemple hélices marines. (Agitateurs pour mélangeage, type II [fig. 4].) Les hélices produisent outre la vitesse circulaire horizontale, une vitesse dirigée directement vers le haut ou vers le

bas selon le pas de l'hélice et le sens de rotation. En plus de cette vitesse verticale primaire la vitesse horizontale crée aussi une vitesse verticale secondaire comme pour le type I.

3. — Soit enfin par des agitateurs munis d'un axe creux en forme de tuyau. (Agitateurs pour mélangeage, type III [fig. 5].) Ce type fonctionne comme une pompe en mettant en mouvement le liquide depuis l'extrémité ouverte jusqu'à l'extrémité de la pale: le mouvement vertical est produit ici d'une manière primaire et il est bien supérieur à la vitesse verticale induite dans un second temps par les forces centrifuges.



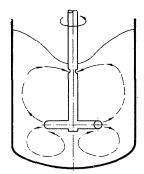


Fig. 5. Agitateur pour mélangeage Type III.

Dans les mélangeurs le liquide doit avoir un mouvement vertical et c'est pourquoi on doit faire tourner l'agitateur du type I avec une grande vitesse. Mais à des vitesses de rotation très élevécs, il apparaît des inconvénients dus à des phénomènes annexes, par exemple la pression centrifuge exercée sur la paroi du récipient au niveau de la pale et l'aspiration qui se produit au fond du récipient font circuler les liquides dans la canalisation de façon non contrôlable et tout l'équilibre hydrostatique de la batterie est détruit: l'appareil ne fonctionne plus correctement. C'est pourquoi nous avons choisi une forme d'agitateur qui puisse accomplir la mélangeage d'une manière primaire. Notre agitateur-tuyau, préféré à la construction la plus primitive avec la succion par en haut et qui exige en même temps, par sa forme, une consommation d'énergie moindre est représenté sur les figures 5 et 6.

Les agitateurs qui créent un mouvement vertical, c'est-à-dire l'émulsion par des effets secondaires et qui par conséquent travaillent à vitesse de rotation élevée, type I et II, ont un autre inconvénient: pour des vitesses de rotation intermédiaires, ils sont déjà accompagnés d'un vortex tel qu'il entraîne une dispersion de l'air dans le liquide. On emploie alors des chicanes dont la présence augmente malheureusement la consommation d'énergie d'une manière prohibitive. De plus, les phénomènes hydrodynamiques parasites que nous avons mentionnés précédemment sont également augmentés.

Mais au lieu des chicanes on peut choisir une solution entièrement différente, qui ne diminue point la grandeur du vortex, mais qui empêche tout de même la dispersion de l'air: on utilise un agitateur centrifuge fermé en haut mais ouvert en bas (fig. 7).

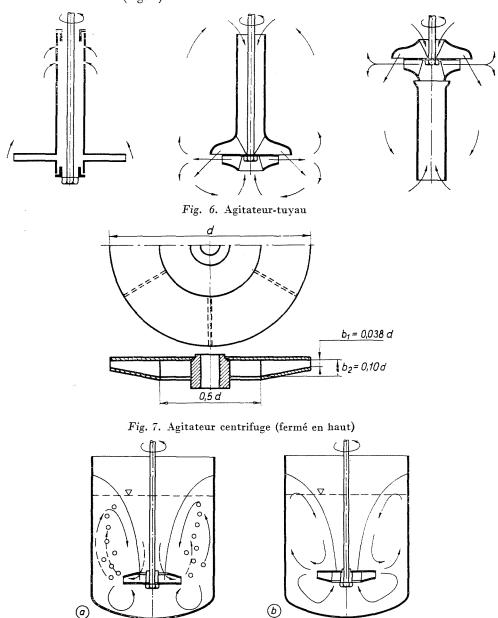


Fig.~8a. Agitateur centrifuge fermé en bas. La dispersion de l'air aura lieu à un nombre critique de Re; 8b. Agitateur centrifuge fermé en haut. Le disque empêche l'infiltration de l'air

Bien que cet agitateur crée un mouvement secondaire vertical, il peut tout de même être utilisé dans des cuves de grande dimension où les effets hydrodynamiques indésirables sont moins importants.

Pour résumer les problèmes du mélangeage dans les mélangeurs-décanteurs, nous pouvons dire qu'il faut faire tourner l'agitateur choisi avec la plus petite vitesse possible: « mélanger mais avec précaution ». Nous pensons que dans les batteries de mélangeurs-décanteurs le contre-courant des deux liquides établi par les différences de pression hydrostatique doit être protégé de toute sorte de perturbation hydrodynamique due aux mouvements de l'agitateur, agitateur qui doit toutefois produire une émulsion presque homogène.

Le problème de l'extrapolation

La littérature nous offre plusieurs règles pour l'extrapolation de mélangeage, par exemple:

1.
$$Re = cte$$
, d'où la règle: $\frac{n_2}{n_1} = \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^2$

2. vitesse périphérique constante

$$\frac{n_2}{n_1} = \frac{d_1}{d_2}$$

3.
$$Fr = cte$$
, $\frac{n_2}{n_1} = \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{0.5}$

4. Consommation d'énergie par unité de volume constante (selon MILLER et MANN [2], si $Eu = A \cdot Re^{-0.2}$):

$$\frac{N}{V} = cte; \quad \frac{n_2}{n_1} = \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{0.57}$$

Toutes ces règles sont arbitraires: elles garantissent la constance de Re, Fr, etc. . . mais on peut se demander s'il y a une relation quelconque entre ces nombres et les conditions fondamentales, par exemple homogénéité, qui sont essentielles pour le bon fonctionnement de l'équipement.

A notre avis, l'extrapolation des extracteurs doit être en général basée sur la constance de l'éfficacité de l'opération et plus spécialement pour les extracteurs du type mélangeur-décanteur sur la constance de l'homogénéité de l'émulsion.

La notion d'efficacité est par excellence une notion téléologique. Elle signifie que sa définition et sa mesure dépendent de l'objectif que l'on se fixe. Dans le cas de l'extraction liquide-liquide, la mesure de l'efficacité doit être au moins égale, ou au moins proportionnelle à la vitesse de transfert de matière.

La notion d'homogénéité d'émulsion signifie que la proportion volumique de la phase dispersée est la même en chaque point du mélangeur. Cet état idéal ne peut être atteint que dans une ampoule à décanter que l'on agite vigoureusement.

Une dispersion produite par l'action de l'agitateur reste toujours plus ou moins hétérogène à cause de l'interaction de la pesanteur et des forces centrifuges. Dans un mélangeur il faut plutôt parler d'un certain degré d'homogénéité qui varie d'un point à l'autre.

Nos observations expérimentales ont montré que, dans un mélangeur, l'équilibre de distribution du soluté s'établit en une minute, si l'homogénéité est bonne. C'est pourquoi la notion d'efficacité d'extraction peut être remplacée par celle d'homogénéité et cela d'autant plus que du point de vue du fonctionnement mécanique c'était déjà cette notion d'homogénéité qui intervenait.

L'homogénéité de l'émulsion

Dans le cas d'une émulsion non homogène, on peut définir deux quantités pour qualifier l'état de l'émulsion.

Soient deux liquides immiscibles (A et B) de volumes respectifs V_A et V_B que l'on veut émulsifier. La fraction volumique moyenne du liquide lourd (A) dans l'émulsion est définie par $\overline{z} = \frac{V_A}{V_A + V_B}$: qu'il ne faut pas confondre avec la proportion des volumes de rétention utilisée habituellement en extraction, $f_V = V_B/V_A$. Cette valeur calculée (\overline{z}) indique en même temps « l'état idéal de l'émulsion », qui n'est atteint en chaque point du mélangeur que pour une vitesse de rotation infinie, mais qui s'établit aisément dans une ampoule à décanter.

La fraction volumique réelle du liquide lourd peut être définie et mesurée en chaque point de l'émulsion, de la même façon par

$$lpha = \left(rac{V_A}{V_A + V_B}
ight)_{
m local}$$

où V_A et V_B sont respectivement les volumes des phases mesurées dans un échantillon pris en un point quelconque. Cette fraction α , dite «locale » doit varier entre zéro et un.

Pavlusenko [3] a défini l'identité de deux systèmes d'émulsion par le fait qu'aux mêmes endroits la fraction locale des composants est la même.

Après une analyse dimensionnelle, il a formulé la similitude de deux systèmes par une équation compliquée que l'on peut simplifier, comme suit:

$$\frac{n_2}{n_1} = \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{1.5}$$

Cette formule, critiquée par TREYBAL [4], a été modifiée par PAVLU-SENKO [5] qui a proposé

$$\frac{n_2}{n_1} = \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{0.87}$$

Nous avons développé et amélioré la méthode en étudiant tout le volume de l'émulsion. Nous avons pris des échantillons en 50-60 points et déterminé pour chaque point la fraction locale de liquide A à émulsifier.

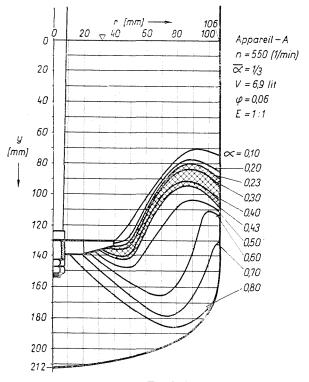


Fig. 9. Emulsification

Note: l'échantillon a été prélevé à l'aide d'une seringue de 20—50 ml de volume dans laquelle la fraction de A peut être lue directement.

A l'aide de ces analyses, nous pouvons dresser une « carte géographique de l'émulsion » en traçant les lignes ou plus précisément les surfaces où la valeur des fractions reste constante, α étant compris entre 0,1 et 0,9.

Parmi ses surfaces, on peut trouver celle qui correspondrait à l'état idéal, $\bar{\alpha}$, et on peut fixer arbitrairement deux surfaces limites ($\bar{\alpha} - 0.1$) et ($\bar{\alpha} + 0.1$).

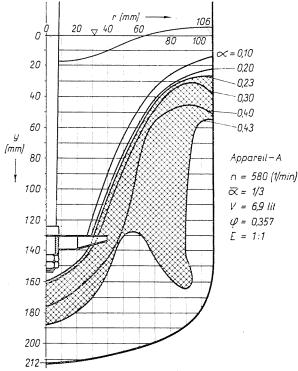
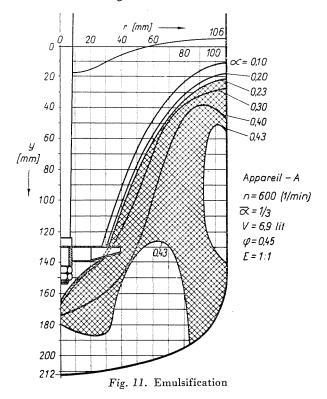


Fig. 10. Emulsification



Nous avons désigné par indice d'homogénéité de l'émulsion le rapport du volume de l'émulsion compris entre ces surfaces limitantes, au volume total.

$$\varphi = \frac{1}{V_{\text{total}}} \int_{(\overline{z} - 0, 1)}^{(\overline{z} + 0, 1)} dV$$

Nous avons déterminé la variation de l'indice d'homogénéité en fonction de la vitesse de rotation dans des récipients de différentes tailles: 7, 45, 80 et 360 litres.

Dans tous les cas, nous avons trouvé que la variation de cet indice peut être exprimée par la formule suivante:

$$\lg \varphi = \frac{-k}{n - n_0}$$

k étant une constante qui dépend de la forme et de la taille du récipient et de l'agitatuer,

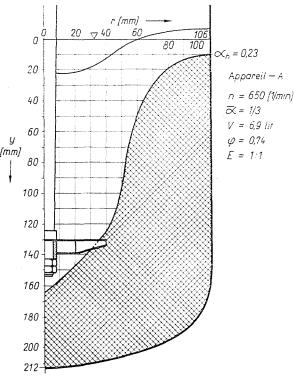


Fig. 12. Emulsification

 n_0 est la vitesse minimale où l'émulsification commence. Elle dépend également de la forme et de la taille du récipient et de l'agitateur.

Les valeurs de k et de n_0 se trouvent dans le Tableau I.

Tr.	Llan	T
	hlea	

Désignation de l'appareil	Volume de l'appareil (litres)	k	(min ⁻¹)	$n_{\varphi} = 0.8$ (min ⁻¹)	$n_{\varphi} = 0.9$ (min ⁻¹)
A	7	16	537	700	900
B	45	11	317	430	560
C	80	9,5	270	370	480
D	360	10	196	300	420

Dans ces conditions l'extrapolation est très simple.

En traçant en coordonnées logarithmiques le diamètre de l'agitateur (d) d'un côté et de l'autre le nombre de tour n_{φ} pour un φ prescrit, on obtient la relation suivante entre 7 et 360 litres (fig. 15).

$$\frac{n_2}{n_1} = \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{0.72}$$

Note: La valeur de l'exposant entre les limites 7 et 80 litres est 0,82 c'est-à-dire très voisin de la valeur de Pavlusenko. Au-dessus de 80 litres l'extrapolation devient moins sensible à la vitesse de rotation de l'agitateur, l'exposant n'étant égal qu'à 0,5. La diminution de la valeur de l'exposant doit être confirmée par de nouvelles mesures.

Les expériences ont été effectuées en adoptant pour le système eau/tétrachloroéthylène le rapport 2/1, la fraction volumique étant de $\alpha = 1/3$. Les

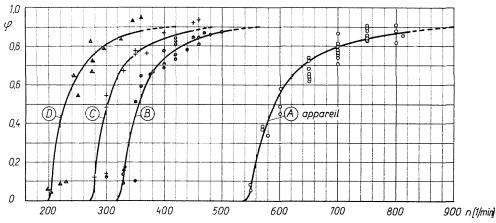


Fig. 13. L'indice d'homogénéité en fonction de nombre de tours

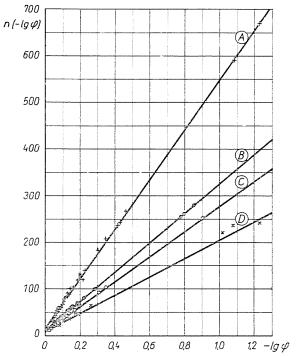


Fig. 14. Détermination des constans de l'équation d'homogénéité

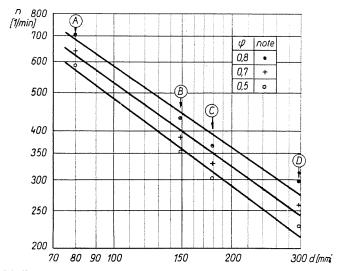


Fig. 15. Détermination de la puissance pour la fonction de l'extrapolation

mesures ont été faites dans des cuves de volumes différents: 7, 45, 80 et 360 litres. Les dimensions principales ont été les suivantes:

d = 80; 148; 179; 297 mm D = 212; 396; 480; 788 mm H = D: h = d

Dans chaque cas, la composition locale de l'émulsion a été déterminée en 50-60 points de la cuve à vitesse de rotation constante. Chaque détermination a été répétée 2-3 fois et toute la série de détermination correspondant à une vitesse de rotation donnée a été répétée quelquefois de 3 à 5 fois.

Les mesures présentées ici ont été réalisées en employant un agitateur de type I. Il faut noter que ce type d'agitateur n'est pas le type idéal pour des cuves de grandes dimensions. Pour des mélangeurs de 100 à 200 litres, nous proposons plutôt les agitateurs du type axe-creux.

Naturellement, il faudrait faire des expériences avec d'autres fractions moyennes (\overline{z}) et d'autres systèmes de liquide et surtout d'autres types d'agitateur.

Quant au rôle du degré de dispersion (la distribution de la dimension des gouttes), nous n'en parlons pas. Nous avons supposé, qu'il reste le même tant que la forme de l'agitateur reste la même. Cette question devrait-elle aussi être examinée.

*

Dankwerts [6] a défini – à partir de considérations de mathématiques statistiques — un nombre, dit «intensité de mélangeage»

$$I=rac{\sigma^2}{arlpha(1-arlpha)}$$

où:

$$\sigma^2 = \frac{1}{n} \Sigma [\alpha - \overline{\alpha}]^2$$

Ce nombre varie de un (si les deux phases ne sont pas mélangées) jusqu'à zéro (si elles sont complètement mélangées). Pour pouvoir le comparer à notre indice d'homogénéisation modifions-le:

$$M=1-I=1-rac{\sigma^2}{\overline{lpha}(1-\overline{lpha})}$$

La variation de ce nombre avec la vitesse de rotation est aussi une courbe sigmoïde comme celle de notre indice d'homogénéité; cependant la ressemblance reste qualitative et n'est pas quantitative.

Résumé

Les auteurs font une investigation détaillée du principe de fonctionnement de l'extracteur mélangeur-décanteur. Ils décrivent une nouvelle construction d'agitateur spécial, le meilleur type pour cet extracteur, nommé agitateur-tuyau.

On déduit une expression pour l'extrapolation du mélangeur dans les systèmes géo-

métriquement similaires basée sur la condition de homogénéité constante de l'émulsion:

$$\frac{n_2}{n_1} = \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^{0.72}$$

Liste des symboles

```
diamètre de l'agitateur (L)
                diamètre du mélangeur (L)
                nombre d'Euler (sans dimension)
                rapport de deux quantités (sans dimension)
                proportion des volumes de deux phases
                proportion massique de deux phases
                quotient des débits massiques des solvants
                quotient des débits volumiques des solvants
                nombre de Froude (sans dimension)
h
                hauteur de l'agitateur au-dessus du fond du mélangeur (L)
_{I}^{H}
                hauteur du niveau de liquide dans le mélangeur (L)
                «intensité de la ségrégation» définie par Danckwerts (sans dimension)
L
                longueur de la partie supérieure resp. inférieure des récipients (L)
                « intensité du mélangeage » (sans dimension)
M
   = 1 - I
                nombre de tours par seconde (T-1)
Q
                puissance (M \cdot L<sup>2</sup> \cdot T<sup>-3</sup>)
                masse (M)
                nombre de Reynolds de l'agitateur (sans dimension)
                volume des phases mesuré dans une échantillon (L3)
V
                volume des phases (L3)
                débit massique des solvants (M \cdot T^{-1})
w
                débit volumique des solvants (L3 · T-1)
W
                distance l'interface mesurée de la ligne moyenne horizontale des récipients (L)
z
                fraction volumique du liquide lourd (sans dimension)
\frac{\alpha}{\alpha}
               fraction volumique moyenne du liquide lourd (sans dimension) poids spécifique du liquide (M \cdot L \cdot T^{-2}/L^3) poids spécifique de l'émulsion (M \cdot L \cdot T^{-2}/L^3) viscosité du liquide (M \cdot L^{-1} \cdot T^{-1})
\delta
                indice d'homogénéité de l'émulsion (sans dimension)
\varphi
                masse spécifique du liquide (M · L-3)
Q
                erreur de probabilité (sans dimension)
```

Index

```
se rapporte à la phase lourde
se rapporte à la phase légère
se rapporte à la partie inférieure
se rapporte aux quantités massiques
se rapporte à la partie supérieure
se rapporte aux quantités volumiques
se rapporte aux débits massiques
se rapporte aux débits volumiques
```

Bibliographie

1. Morello, V. S.-Puffenberger, N.: Ind. Eng. Chem. 42, 1021 (1950).

- 2. Tettamanti, K.-Migray, E.-Nógrádi, M.-Sawinsky, J.-Nagy, S.: Brevet hongrois 151.614 (Sept. 1964).
- 3. Tettamanti, K.-Havas, G.-Sawinsky, J.: Acta Chim. Acad. Sci. Hung. 60, 191 (1969) (Partie I.).
- 4. Tettamanti, K.-Havas, G.-Sawinsky, J.: Acta Chim. Acad. Sci. Hung. 71, 445 (1972) (Partie II.).
- MILLER, S. A., MANN, CH. A.: Trans. Am. Inst. Chem. Engr. 40, 709 (1944).
 PAVLUSENKO, I. S.-Janisevskij, A. V.: J. Prikl. Him. 31, 1348 (1958).
 TREYBAL, R. E.: Liquid Extraction. 2. Ed. McGraw Hill, New York, 1963.

8. PAVLUSENKO, I. S.: J. Prikl. Him. 36, 322 (1963).
9. DANCKWERTS, P. V.: Appl. Sci. Res. Sec. A. 3, 279 (1952).

Prof. Dr. Károly TETTAMANTI,

Dr. Géza HAVAS

H-1521 Budapest