液々向流型充填層における分散相の挙動*

—衝突モデルによる混合特性の解析—

駒 沢 勲**・櫻 田 栄 一**
大 竹 伝 雄**

大阪大学基礎工学部 化学工学科

緒 言

液々向流型充填における分散相は不連続な流体であるにもかかわらず、分散相の挙動は連続流体を対象としたモデルによって説明されてきた⁶⁾。著者らはさきに分散相には相互の合体再分散現象が存在すること²⁾に着目し、さらに他の研究者による結果^{1,3,9)}も参考にして、分散相の挙動をモデル化する第1段階として衝突モデルを提案した^{7,8)}。

本研究ではこのモデルをさらに一般的な場合に拡張するとともに分散相混合特性を測定し、これを衝突モデルにもとづいて解析する。

Fig. 1 Coalescence and redispersion of droplets in liq.-liq. packed bed for the case without moving droplets in some stages

* <Behaviors of Dispersed Droplets in Countercurrent Packed Beds for Liquid-Liquid Contact —Further Analysis of Longitudinal Dispersion Characteristics of Dispersed Phase by Collision Model— Received on January 8, 1966

1965年11月25日 第4回総合シンポジウム(東京)にて発表

** Isao Komazawa, Eiichi Kunugita and Tsutao Otake (Faculty of Engineering Science, Osaka University, Toyonaka)

1. 分散相の挙動と拡張した衝突モデル

さきに提案したモデルでは1 stage 内に液滴は r 個あり、このうち静止液滴は1個、移動液滴は $(r-1)$ 個、 $\{(r-1) \geq 1\}$ 存在するとした。本研究では層内における静止液滴の全個数よりも移動液滴の全個数の方が少ない場合を考える。すなわち1 stage 内に移動液滴と静止液滴が各1個ずつ存在する stage と、移動液滴が存在せず静止液滴のみ存在する stage とが層内に分布している場合である。

この2種類の stage の比を1対 $(j-1)$ 、すなわち、 j stage ごとに移動液滴が存在する stage が1段ずつ分布しているものとする。移動液滴は1回衝突して次の stage に移る。したがって移動回数と衝突回数は一致するので層内に入った液滴は第 m 番目の stage に $n=m$ 回移動して到達する。さらにこの滴が j 回移動することに新しい滴が層内に入るから第 m 番目の stage に移動液滴が存在するのは $n=m, m+j, m+2j, \dots$ なる関係を満足する時である。したがって第 m 番目の stage の滴の濃度 $C_{m,n}$ は前報⁷⁾の(1)式に対応して次式に示す量論的關係で表わされる。

$$C_{m,n} = pC_{m-1,n-1} + qC_{m,n-j} \quad (n=m, m+j, m+2j, \dots) \quad (1)$$

ここで p は1回の移動によって液滴成分の移動する比率であり、 q は停滞する比率である。

Fig. 1 に $j=2$ の場合に1個の液滴の微小部分が合体再分散によって層内に分布していく状態を示す。なおこのモデルの極限として $j=1$ の場合は全 stage に移動液滴が1個ずつ存在する場合であり、さきに提案したモデルにおける移動液滴数 $(r-1)=1$ の場合に相当する。

衝突モデルの諸性質を確率密度関数を用いて表現し、これを Table 1 に示す。衝突モデルと拡散モデルおよび槽列モデルとの関係を明らかにするためこれらのモデルの諸性質も併せて示す。

このモデルとさきに提案したモデルとの関係を表示するために無次元化時間 $(\tau=n/N=t/\theta)$ 基準の過渡応答曲線を算出し、これを Fig. 2 に示す。ここでは、 $p=q=1/2$ 、 $m=3$ の場合について移動液滴数 $(r-1)$ 、あるいは

Table 1 Characteristics of the residence time distribution functions for the collision model and the other dispersion models

model	residence time distribution function	continuity		variance	mean	types of function
		for position	for time			
perfectly mixed cell	$\frac{m'(m'\tau)^{m'-1} \exp(-m'\tau)}{(m'-1)!}$	discrete	continuous	θ^2/m'	θ	Poisson
diffusion	$\frac{\sqrt{M/2\pi}(\tau-\theta/n)}{\times \exp\{M-(1/2)(\sqrt{2M/\tau} + \sqrt{2\tau M})^2\}}$	continuous	continuous	θ^2/M	θ	normal
collision	1* $\left\{ \frac{n-(r-2)m-1}{m-1} \right\} \cdot p^m \cdot q^{n-(r-1)m}$	discrete	discrete	$(q/p^2)m$	$m(r-1+q/p)$	binomial
	2** $\left\{ \frac{(n-m)/j+m-1}{m-1} \right\} \cdot p^m \cdot q^{(n-m)/j}$	discrete	discrete	$(q/p^2)mj^2$	$m(1+jq/p)$	binomial

* for the case where moving droplets are in each stage

** for the case where one moving droplet is in connected j stages

Inserting $s=n-(r-1)m^*$ and $s=(n-m)/j^{**}$ into above equations respectively, one can get the same equation for both cases as follows, $g(s) = \binom{s+m-1}{s} \cdot p^m \cdot q^s$ ($s=0, 1, 2, \dots$)

は移動滴が存在する stage が全 stage に対し占める比率, $1/j$ をパラメータとした。Fig. 2 から静止滴 1 個に対する移動滴の数が増加すればそれだけ押し出し流れの状態に近づくことがわかる。

2. 衝突モデルによる混合特性の解析

分散相ホールドアップにはフリーホールドアップ X_f , パーマネントホールドアップ X_p , およびこの両者の和としてのトータルホールドアップ X_t がある。このうちフリーホールドアップ X_f は連続相流量 F_c および分散相流量 F_d の増加に伴って増大し, 特に F_d によって著しく増大するが, パーマネントホールドアップ X_p は液系の物性, および充填物によって定まり, F_c, F_d の影響はほとんどないことが知られている^{1,6,9)}。パーマネントホールドアップ X_p が両相流量 F_c, F_d にほとんど影響されなければ衝突モデルにおける静止滴の状態が両相流量に無関係に一定となることに対応する。したがって, 静止滴の径および数は各々一定であると見なせるはずである。

フリーホールドアップ X_f の流量による変化が滴数の変化に起因する場合には 1 stage 内の滴数 r , または移動滴が存在する stage が全 stage 中に占める比率 $1/j$, の変化に対応し, 液滴径の変化に対応する場合には移動滴と静止滴の容積比 (p/q) の変化に対応している。なお移動滴と静止滴の容積比 (p/q) と移動滴径 d_f , および静止滴径 d_p の間には,

$$(p/q) = (d_f/d_p)^3 \quad (2)$$

なる関係が成立する。以上の考えにもとづいて分散相混合特性を衝突モデルによって解析する。

2.1 ホールドアップ比 (X_t/X_p) と無次元項 M の関係

さきのモデルでは 1 stage 内の移動滴と静止滴の容積

Fig. 2 Some typical indicial response curves in the case of $m=3$ and $p=q=1/2$, with the number of droplets in one stage as a parameter

比は (p/q) , その個数比は $(r-1)$ 対 1 であった。したがって p, q, r と (X_t/X_p) の関係として次式が成立した⁷⁾。

$$(X_t/X_p) = (X_t/X_p) - 1 = (p/q)(r-1) \quad (3)$$

拡散モデルにおける排出密度分布関数の分散と衝突モデルにおけるそれとを比較する⁴⁾ ことによって両モデルの間には次式の関係が成立した。

$$M = (m/q)\{p(r-1)+q\}^2 \quad (4)$$

このモデルでは相隣り合った j 段の stage に 1 個の割合で移動滴が存在するから, この場合の関係は $(r-1)=1/j$ とおくことによって (3), (4) 式と全く同一の関係で表現される。

さらに (3)(4) 式から r を消去すると次式が得られる。

$$M = (m \cdot q)(X_t/X_p)^2 \quad (5)$$

(5) 式は M 対 (X_t/X_p) の一般的な関係を示す。

2.2 ホールドアップが流量によって変化する機構
ホールドアップが流量によって変化する機構として次の三つの場合が考えられる。

Fig. 3 Typical correlation of dimensionless term, M , and hold-up ratio, (X_t/X_p) , with the number of droplets in one stage as a parameter

1) 移動滴数のみが変化する場合 1回の衝突によって液滴成分が移動する比率 p , 停滞する比率 q , が一定の場合を考えているから (5) 式において $(m \cdot q)$ は一定となる。したがって M は (X_t/X_p) の 2 乗に比例する。

2) 移動滴径のみが変化する場合 (3), (5) 式から p, q を消去すると (6) 式が得られる。

$$(X_f/X_p) = (X_t/X_p) - 1 = -(r-1) + m(r-1)(X_t/X_p)^2/M \quad (6)$$

したがって (X_f/X_p) 対 $(X_t/X_p)^2/M$ をプロットすれば直線となり, この直線の勾配は $m(r-1)$ を, 切片は $-(r-1)$ をあらわす。

M 対 (X_t/X_p) の関係は滴数 r によって異なる*。すなわち r が大なるに伴い, 滴径の変化が (X_t/X_p) に及ぼす影響は小さくなり, この極限として $r=\infty$ の場合には, 1) の場合と同様に M は (X_t/X_p) の 2 乗に比例する。しかし, $r=\infty$ の場合には, (4) 式から $p \rightarrow 0$ でなければ, $M \rightarrow \infty$ となることがわかる。この関係を Fig. 3 に示す。

3) 機構が変化する場合 ある (X_t/X_p) の値を境としてさきに述べた一つの機構が他の機構に変化することが考えられる。 (X_t/X_p) の増加にしたがい, まず液滴径のみが増大し, ある液滴径に到達すれば液滴径は変化しなくなり, ついで滴数のみが増大する (機構 2) $\rightarrow$ 1) 場合, あるいはまず滴数のみが増大し, ある数にまで到達すればもはや滴数は増加せずついで液滴径が増大する (機構 1) $\rightarrow$ 2) 場合の二つが考えられる。ここで機構が変化する境界は, (5) 式を (6) 式に代入して,

* 前報において, 移動滴径のみが変化する場合, M は (X_t/X_p) の 1 乗に比例すると考えたのは滴数 $r=2$ の場合のみを考えたからである。

$(X_t/X_p) - 1 = -(r_0 - 1) + (r_0 - 1)/q_0$ なる点で示され, r_0 は $r = \text{const.}$ なる範囲における滴数, q_0 は $q = \text{const.}$ なる範囲における q の値である。

3. 実験および実験結果

3.1 装置および操作

本実験では水を液滴状の分散相とするため塔はアクリル樹脂製 (内径 8.0 cm), 充填物はアクリル樹脂製ラシヒリング (代表径 15 mm), およびポリエチレン製ラシヒリング (代表径 6 mm および 10 mm) を使用した⁵⁾。連続相としてはクロソシンと四塩化炭素の等量混合物を使用した。なお連続相流量が分散相混合特性に及ぼす影響は小さいため⁶⁾, 連続相は本実験を通じて静止させて行なった。混合特性の測定は過渡応答法によるものであり, 装置および操作法はさきの液々向流型充填層の分散相の離合集散に関する研究²⁾に用いたものと全く同一である。

ホールドアップの測定としては分散相の供給排出を同時に停止したときの塔上部における連続相分散相界面の変化からフリーホールドアップ X_f を求め¹⁾, そのとき層内に滞留する全液量を層外へ排出する方法⁹⁾によってパーマネントホールドアップ X_p を求めた。

液滴径の測定は写真撮影法によった。充填層出口部で層から流出した直後の液滴を撮影したので, これは移動滴径である。塔が円筒形であるために生ずる映像のヒズミを除去するため塔の周りに直方体のジャケットを付けこれに連続相と同一の液を入れた。遠近差にもとづく誤差を最小にするため望遠レンズ (Nikon. 135 mm $f=3.5$) を用い, 被写体との距離が短い接写リング (Nikon. $K=1, 2, 3, 5$) を使用した。光源としてはストロボを用い, 被写体の背面よりスリガラス板を通して照射した。撮影された液滴径は写真からノギスで測定した。各液滴について回転楕円体であるとみなし¹⁰⁾, $d_t = \sqrt{d_l \cdot d_s}$ (d_l ……長径, d_s ……短径) なる関係より径 d_t を算出し, これらの平均値 d_f としては, $d_f = (\sum n_i d_i^4 / \sum n_i d_i^3)$ なる関係から算出した。

3.2 実験結果

1) 分散相ホールドアップ 本実験にて測定されたトータルホールドアップ X_t , およびパーマネントホールドアップ X_p 対分散相流量 F_d の関係を Fig. 4 に示す。ベンゼンを分散相, 水を連続相とした前報による結果⁶⁾も併せて示す。ここでフリーホールドアップ X_f は X_t と X_p の差である。Fig. 4 によると X_t, X_p 対 F_d の関係について次の現象が認められる。 X_t は F_d の増加に伴い, いずれの液系, あるいは充填物においても増大する。一方 X_p は各実験系によって異なった値であるがいずれの系においても F_d によって変化せず一定とな

Fig. 4 Effect of dispersed phase flow rate on the fractional total hold-up X_t and the fractional permanent hold-up X_p

る^{1,6,9)}。この実験的事実は衝突モデルにおいて静止滴の状態が流量に無関係であることに対応するものであり、したがって静止滴径 d_p および stage 数 m は各系ごとに一定の値となると考えられる。

2) 機構の解析 衝突モデルによれば M 対 (X_t/X_p) の一般的な関係は (5) 式にて示される。そこで測定された M と (X_t/X_p) の関係をプロットしたのが Fig. 5 である。本実験における測定結果とともに、10mm 磁製ラシヒリングを充填し、連続相として水、分散相としてベンゼンを使用した系の結果⁶⁾ も併せて解析する。この前報の系では層高が 90cm であり、本実験系では 110cm であるため (110/90) 倍して層高の補正をした M を示す。Fig. 5 によると M 対 (X_t/X_p) の関係について次の現象が認められる。

i) 10mm ポリエチレン製ラシヒリングおよび 15mm アクリル樹脂製ラシヒリングを充填した場合、 (X_t/X_p) の全域にわたり M は (X_t/X_p) の 2 乗に比例している。この測定結果は本モデルによれば (5) 式における $(m \cdot q)$ が (X_t/X_p) の値にかかわらず一定であるこ

Fig. 5 Logarithmic plot of the experimental data of dimensionless term M , and hold-up ratio (X_t/X_p)

とを示す。したがって (X_t/X_p) の変化は移動滴数の増加のみによるものであり、液滴径は分散相流量によって変化しないことに対応する。

ii) 6mm ポリエチレン製ラシヒリングを充填した場合、 $(X_t/X_p) \leq 2.45$ では M は (X_t/X_p) の 2 乗に比例している。一方 $(X_t/X_p) \geq 2.45$ では勾配が変化し、もはや $(m \cdot q)$ は一定ではないことを示している。そこで (6) 式にもとづいて、 (X_t/X_p) 対 $(X_t/X_p)^2/M$ をプロットしたのが Fig. 6 である。Fig. 6 から $(X_t/X_p) \geq 2.45$, $\{(X_t/X_p) \geq 1.45\}$ の範囲で (X_t/X_p) 対 $(X_t/X_p)^2/M$ の関係は直線であらわれ、この直線の勾配および切片から stage 数 $m=3.5$ 、1 stage 内の移動滴数 $r-1=4$ であることが算出される。この結果は本モデルによれば (X_t/X_p) が 2.45 に到達するまでは (X_t/X_p) の増加する原因は移動滴数の増加によるものであり、 (X_t/X_p) が 2.45 に到達すれば以後は移動滴径の増大によって (X_t/X_p) が増大し、滴数は増加せず一定であると説明される。

iii) 10mm 磁製ラシヒリングを使用し、ベンゼンを分散相とした系では M (対 X_t/X_p) の関係は Fig. 5 に示すように曲線で示される。このことは (X_t/X_p) の変化は液滴径の変化にもとづくものであり、しかもこれは本研究にて拡張したモデルの場合、すなわち $r-1 < 1$ の場

合に相当することを示している。そこで(6)式にもとづいて測定値をプロットした Fig. 6 から、 $r-1=1/2$ 、($1/j=1/2$)、 $m=2.52$ となることがわかる。したがってこれは 2 stage について 1 個の割合で移動滴が存在し、 (X_t/X_p) の増加は液滴径の増大によるものであると説明される。

つぎに ii) の 6mm ポリエチレン製ラシヒリングを使用した場合、および iii) の 10mm 磁製ラシヒリングを使用した場合の q を (3) 式にもとづき算出し、 q 対 (X_t/X_p) の関係を Fig. 8 に ●印にて示す。ii) の場合 q は $(X_t/X_p) \leq 2.45$ では 0.73 で一定であるが、 $(X_t/X_p) \geq 2.45$ では移動滴径が増大するため漸次小さくなる。iii) の場合、 q は 0.4 から 0.16 まで減少する。これはこ

の実験系では静止滴径は移動滴径より小さく、かつまた移動滴径は分散相流量の変化に伴って大きく変化することを示す。なお算出された各系の移動滴数 ($r-1$) を (3) 式に代入すれば、各系の q 対 (X_t/X_p) の関係として各々次式が算出される。

$$6\text{mm ポリエチレン製ラシヒリングを充填した場合,} \\ q=0.73 \quad (X_t/X_p) \leq 2.45$$

$$q=4/(X_t/X_p+3) \quad (X_t/X_p) \geq 2.45 \quad (7)$$

10mm 磁製ラシヒリングを充填し、ベンゼンを分散相とした場合⁶⁾,

$$q=1/(2X_t/X_p-1) \quad (8)$$

3) 機構の検討 移動滴と静止滴の容積比 (p/q) と移動滴径 d_f 、静止滴径 d_p の関係は (2) 式であらわせた。したがって d_f の実測値から (2) 式の関係にもとづき (p/q) の変化を算出することができる。そこで液滴径 (移動滴) d_f を直接写真撮影した結果から算出した p 、 q の流量による変化と、分散相混合特性 (M 対 X_t/X_p の関係) を解析して算出した結果を比較する。

撮影による滴径の測定結果を d_f 対 F_d として Fig. 7 に示す。ここで径が 2~3mm の小滴が多少存在するが容積としては全液滴の数パーセントにも満たないので混合特性には寄与しないものと考え無視した。Fig. 7 から、 d_f 対 F_d の関係は各液系および充填物によって異なることがわかる。

そこで Fig. 7 に示す d_f 対 F_d の測定結果と、Fig. 5 に示す M 対 (X_t/X_p) の測定結

Fig. 6 Determination of number of stages m , and number of droplets r , defined in collision model

Fig. 7 Variation of mean droplets diameters with dispersed phase flow rates

Fig. 8 Comparison of the fraction q obtained from the relation of M and (X_t/X_p) , with that obtained from the photographs of droplets

果とを、液滴径(移動滴) d_f が F_d によって変化する場合と変化しない場合に分け、各々の場合について比較すると次の事実が認められる。

i) 10mm ポリエチレン製 ラシヒリングおよび 15mm アクリル樹脂製 ラシヒリングを充填した系においては全分散相流量域にわたって、 $d_f=8.5\sim 8.7\text{mm}$ となり一定であるとみなされる。このことは混合特性の解析によって決定した結果、すなわち M は (X_i/X_p) の全域にわたってその 2 乗に比例する(したがって p, q は F_d によって変化せず一定である)という結果と一致する。

ii) 6mm ポリエチレン製 ラシヒリングを充填した系においては低分散相流量域 ($F_d < 8.0\text{m}^3/\text{m}^2\cdot\text{hr}$) では $d_f=7.0\text{mm}$ であるが、さらに F_d が増加すると d_f は漸次増大する。静止滴径 d_p として、 $F_d < 8.0\text{m}^3/\text{m}^2\cdot\text{hr}$ における d_f と $q (=0.74)$ から(2)式の関係にもとづいて算出すれば、 9.8mm となる。10mm 磁製ラシヒリングを充填し、ベンゼンを分散相とした系では F_d の増加に伴って d_f は著しく変化し、 $d_f=7.2\text{mm}$ ($F_d=3.1\text{m}^3/\text{m}^2\cdot\text{hr}$) から $d_f=9.6\text{mm}$ ($F_d=15.5\text{m}^3/\text{m}^2\cdot\text{hr}$) まで増大する。 $F_d=3.1\text{m}^3/\text{m}^2\cdot\text{hr}$ における d_f と $q (=0.40)$ から(2)式の関係にもとづき $d_p=6.3\text{mm}$ を得る。

これらの静止滴径 d_p および実測された移動滴径 d_f

から(2)式の関係を用いて、 q の値の変化を各 (X_i/X_p) について算出し、Fig. 8 に○印にて示す。混合特性の解析によって算出した q (●印にて示す)と液滴径の実測値から決定した q はいずれの系においても (X_i/X_p) の増加に伴って減少し、両者は測定誤差内で一致するものと考えられる。

結 論

液々向流型充填層における分散相の挙動をモデル化した衝突モデルを本研究ではさらに一般化した。分散相混合特性を測定し、これを衝突モデルによって解析した。分散相ホールドアップの変化が液滴径の変化にもとづく系と、液滴数の変化にもとづく系に本モデルによって分類し、この結果を液滴径の直接撮影によって確認した。そして充填層内の分散相流れ機構は本モデルによっても十分に説明されることがわかった。

【付 記】 本研究のうち実験を行なうにあたり協力された久谷真一君(阪大大学院学生)に感謝する。

本研究は文部省科学研究費の補助によって行なわれた。付記して感謝する。

Nomenclature

C : concentration	position having made one coalescence and redispersion
d : diameter of droplet	r : number of one droplet in one stage defined in collision model
F : superficial flow rate of liquid	t : time
f, g : probability density function	X : fractional hold-up of dispersed phase
j : number of connected stages in which one moving droplet exists	$\tau=t/\theta$: dimensionless time based on the mean residence time
$M=(uL/2E)$: dimensionless term for diffusion model expressing the extent of longitudinal dispersion	
m : number of stages defined in collision model	
m' : number of cells defined in perfectly mixed cell model	
n : number of travelings of a portion of one droplet in packed beds defined in collision model	
N : mean coalescence (and hence redispersion) frequency of one droplet from inlet to outlet of the packed bed	
p : fraction of discharge from the position having made one coalescence and redispersion	
$q=1-p$: fraction of material remaining at the	

Subscript

p : refers to permanent hold-up, or to retained droplets
f : refers to free hold-up, or to moving droplets
t : refers to total hold-up
c : refers to continuous phase
d : refers to dispersed phase
m : refers to the m -th stage from the inlet of the packed bed
n : refers to the number of travelings from the inlet of the packed bed

Literature cited

- Gayler, R. and H. R. C. Pratt: *Trans. Instn. Chem. Engrs.* (London), **29**, 110 (1951)
- Komasawa, I., S. Hisatani, E. Kunugita and T. Otake: *Kagaku Kōgaku (Chem. Eng., Japan)*, **30**, 450 (1966)
- Lewis, J. B. and H. R. C. Pratt: *Trans. Instn. Chem. Engrs.* (London), **29**, 126 (1951)
- Miyauchi, T.: "Ryukeisosa to Kogotokusei", Nikkan-kogyo-shinbunsha, Tokyo (1960)
- Moorhead, D. H. and D. M. Himmelblau: *Ind. Eng. Chem. Fund. Ser.*, **1**, 68 (1962)
- Otake, T., E. Kunugita and I. Komasawa: *Kagaku Kōgaku (Chem. Eng., Japan)*, **29**, 322 (1965)
- Otake, T., E. Kunugita and I. Komasawa: *ibid.*, **30**, 237 (1966)
- Otake, T., E. Kunugita and I. Komasawa: *Technol. Rept. Osaka Univ.*, **15**, 9 (1965)
- Wicks, C. E. and R. B. Beckmann: *A. I. Ch. E. Journal*, **1**, 426 (1955)

移動層における攪拌時の伝熱（大竹伝雄・東総節治・清水敏正，化学工学，30，891～895（1966））一定壁温で加熱された管内を流通する固体粒子を楔形羽根で攪拌し，定常状態に達してから，数か所の降下断面で温度分布を測定した。

伝熱機構が羽根挿入部（Ⅰ）と羽根-槽壁間部（Ⅱ）でことなることを考慮し，実測温度分布から式（1），（2）を用いて有効熱伝導度 k_{w1} , k_{w2} 並びに壁面伝熱係数 h_w を算出した。

伝熱過程が粒子混合過程と類似するものとし，これらの係数と操作因子（羽根径，回転速度ら）の関係を式（8），（15）として整理した。

バルスカラムにおける物質移動の研究（宮内照勝・大矢晴彦・菊地辰次・橋爪 浩・香川一雄，化学工学，30，895～903（1966））54mmφのバルスカラムにおける，M. I. B. K. の水への溶解実験と，酢酸および酪酸の M. I. B. K. 相より水相への抽出実験を行ない，得られたデータの解析に混合拡散を伴う二相向流接触操作についての理論の適用を試みた。

主相側物質移動係数は小滴径域では Ranz-Marshall の剛体球表面でのそれに近く，大滴径となるに従い Higbie の値に近づく滴内循環流を生じ始めると思われる。両相支配の総括物質移動係数は滴径の減少とともに急激に減少し，液滴を固体球と考えて解析した分子拡散にもとづく理論値 Ranz-Marshall-Newman の値以下となっている。

重曹の熱分解におよぼす熱および物質移動効果（鬼頭正和・杉山幸男，化学工学，30，904～909（1966））重曹の熱分解速度に対する熱および物質移動の効果が試料を内熱および，あるいは外熱することにより検討された。

加圧成型された重曹単一球を試料として用いた。反応速度を含め，移動効果を考慮に入れて，理論式 Eq.(1)～(3)を誘導し，計算機により数値解析を行なった。

Fig. 3～6 に示すように，分解率分布および温度分布について計算結果は，先に報告された熱移動にもとづく理論式による計算結果に比べ，実験結果とよく一致している。

次に理論式は，内熱法による分解率分布の実験データをよく説明している。

最小二乗法による速度パラメータの算出（日崎司，化学工学，30，910～915（1966））速度パラメーターに関して非線形の Hougen-Watson 速度式を線型化し最小二乗法を用いてパラメーターを算出する際には重み関数を含んだ最小二乗法を使用すべきである。Hougen-Watson 式に対して適当な重み関数が誘導され，この重み関数付き線型最小二乗法で算出したパラメーター値は非線型最小二乗法で求めたパラメーター値とはほぼ同一である。

高粘性流体における混合拡散（宮内照勝・大矢晴彦，化学工学，30，915～922（1966））高粘性流体を均質化する操作において，界面増加を伴う拡散による均質化時間と，界面積増加と化学反応を伴う見かけの均質化時間を理論的に求め，両者の関係を明らかにした。同心二重円筒，押出機，インターナルミキサーにおける均質化時間を導出し，沃素とチオ硫酸ソーダの反応を用い，沃素の着色の消える距離を押出機について実測した。

攪拌槽内の循環時間分布（井上一郎・佐藤一省，化学工学，30，922～927（1966））攪拌槽内の混合は翼の吐出，吸引作用により形成される循環流の対流機構によって主に引き起こされるという観点から，循環時間分布を追跡粒子法で測定し，それと槽内の基本的な混合過程との相互関係を解析的に，実験的に検討した。

液々向流型充填層における分散相の挙動——衝突モデルによる混合特性の解析（駒沢 勲・榎田栄一・大竹伝雄，化学工学，30，928～933（1966））分散相の流動現象を模型化して提案した衝突モデルを移動速度が静止滴数よりも少ない場合にも適用できるよう一般化した。分散相混合特性を測定し，これを衝突モデルによって解析した。その結果から算出した液滴径の流動による変化と，液滴径を直接写真撮影して求めた変化とが一致することから充填層内の分散相流れ機構は衝突モデルによっても説明されることが確認された。

水ジェットと同伴量とその混合状態（沖田直澄・伊藤四郎，化学工学，30，934～940（1966））Donald らの装置を改良した角形水槽を用いて，円形水ジェットについて実験を行ない，次の結論を得た。1) ジェット角度はほぼ 14° である。2) 軸方向と半径方向の速度分布ならびに濃度分布を測定し， $\epsilon_{m, cr}$ と Sc_{turb} を算出した。その結果，半径方向分布はどれもガウスの誤差曲線ではほぼ近似できることを認めた。3) ジェット同伴量を直接測定し実験式を与えたとともに，流速分布より同伴量式を求めれば両者が一致することを確かめた。

移動層における攪拌時の混合特性（大竹伝雄・東総節治・松尾博之，化学工学，30，941～946（1966））攪拌羽根を挿入する移動層粒子の軸方向・半径方向混合度を測定するために，二つの操作をおこなった。

$K_2Cr_2O_7$ または $NaCl$ をトレーサ粒子法として用い，これを定常的に降下する豊浦砂層の頂部へ導入し，その後の軸方向過渡的濃度分布を測定した。これから粒子流速が大なるときには，粒子層は押し出し流れとなり，流速が小なるときは羽根挿入部（Ⅰ）と羽根-槽壁間部（Ⅱ）で流速の差異ができ，この関係は式（12）で表示された。

他方軸方向が押し出し流れとなる流速範囲のもとに粒子層頂部に中心軸に一定装入半径でトレーサ粒子を装入し，定常状態に達したときの断面濃度を測定した。拡散過程との類似性を適用し，部分（Ⅰ）と部分（Ⅱ）で混合機構がことなることを考慮し，半径方向混合係数を実測濃度から算出し，操作因子との関係を式（9），（10）で整理した。

粉体層の付着力測定（中島裕夫・後藤圭司・田中達夫，化学工学，30，946～947（1966））種々の付着力によって生ずる粉体の凝集現象は粉体を取り扱う単位操作において重要な問題である。従来粉体の付着力測定について多くの方法が提案されているが決定的な方法はないようである。そこで筆者らは圧縮成型粉体層の引っ張り試験によって総括的な付着力を求める装置を試作し，一粉体試料について測定結果の再現性を検討した。その結果危険率1%の信頼区間を対象として誤差±3%の精度をえた。

多孔質固体の過熱水蒸気乾燥における伝熱係数（桐葉良三・岡崎守男・林村 睦・植田洋臣，化学工学，30，947～948（1966））過熱水蒸気および空気-水蒸気混合気流による粘土素焼球の単一球，固定層通気乾燥実験を行ない，その恒率乾燥速度から材料内気流間の伝熱係数を求めた。その結果，物性値を考慮すれば，多孔質固体球の過熱水蒸気乾燥における伝熱係数は空気乾燥の場合のそれと異なることを確かめた。

多孔質固体の過熱水蒸気乾燥における乾燥特性（桐葉良三・岡崎守男・林村睦・久保田克之，化学工学，30，949～950（1966））過熱水蒸気および空気-水蒸気混合気流中において粘土素焼球の単一球乾燥実験を行なった。その結果，空気乾燥の場合に比べて，過熱水蒸気乾燥の場合は恒率乾燥期間がより低含水率まで続き，減率期間における乾燥速度特性にも著しい差を認めた。

高粘弾性液の攪拌槽におけるワイゼンベルグ効果（植村恒彦・大島栄次・井上博愛，化学工学，30，950～951（1966））Hydroxy Ethyl Cellulose (Natrosol) の高粘性水溶液を用いてタービン型インペラー攪拌槽におけるフローパターンを正味計を用いて測定したところ，粘度が13,500 cp 以上の液では従来知られているインペラーからの吐出流によるフローパターンと全く逆方向の循環流が生ずる結果が得られた。このフローパターンの逆転現象は攪拌軸によるワイゼンベルグ効果によるものと思われる。