流動層による粒子のコーティング*

——最大処理流量および粒子コーティング量分布について——

原 田 和 夫**・藤 田 仁 四 郎**

日立造船株式会社 技術研究所

緒 言

最近、気固系流動層にスプレーノズルを組合わせる方法が、流動層の熱移動と粒子混合の良好な点に注目されて、各種の分野において研究されている。たとえば、溶液の蒸発について Jonke ら¹⁾、Vanecek ら²⁾、結晶の造粒について Metheny ら³⁾、カ焼に関して Grimmer^{2,3)} Lee ら⁴⁾の研究が報告されている。しかるに、この方法における最大の問題点が流動層内粒子の造粒機構にあるにもかかわらず、現在までのいずれの研究も造粒の三機構——(i) 新粒子の生成、(ii) 粒子間の凝集、(iii) 粒子へのコーティング——が一体となって起っているものであるために系統的な明確さがない。そこで著者らはまずコーティングのみが起る場合をとりあげ、直径0.6 m、高さ1.8 mの工業化試験装置を用いて種々検討を行っている。さきにはコーティング流動層における粒子成長速度とコーティング効率について報告⁵⁾したが、今回、一定の流動層条件において処理できる最大コーティング液量と連続流動層における排出粒子のコーティング量分布について検討したのでここに報告する。

1. 実験装置

実験に用いた流動層装置を Fig. 1 に示す。流動層は直径0.6 mの円筒型単一流動層で、ベッドは多孔板(孔径3 mm、開孔率8%)と金網(100メッシュ)で構成されている。シード粒子は流動層端にロータリバルブで定量供給されコーティングをうけたのち、他端からオーバーフローして排出される。流動用ガスとしてはプロパンガスの燃焼排ガスと空気を混合して用いたが、層内で粒子と熱交換して粒子表面からコーティング液中の水を蒸発させ乾燥させたのちサイクロンを通してブロウで大気へ放出される。コーティング液を流動層に供給するスプレーノズルは市販のうず巻型圧力ノズルで、流動層の上方に下向きにとりつけた。

シード粒子としては、最大処理流量の検討にはけい砂(16/28

* <Particle Coating in the Fluidized Bed —Maximum Feed Rate and Coating-ratio Distribution of Particles—> Received on September 29, 1967

昭和41年10月化学工学協会東北大会および昭和42年4月化学工学協会第32年會にて講演発表

** Kazuo Harada, Jinshiro Fujita (Technical Research Laboratory, Hitachi Ship-building & Engineering Co., Ltd., Osaka, Japan)

メッシュ、表面積平均径0.0792 cm、真密度2.65 g/cm³、みかけ密度1.32 g/cm³、最小流動化速度62.4 cm/sec、形状係数0.776)、コーティング量分布の検討にはガラス球(10/20メッシュ、表面積平均径0.104 cm、真密度2.51 g/cm³、みかけ密度1.49 g/cm³、最小流動化速度85.9 cm/sec、形状係数0.975)をそれぞれ使用した。またコーティング液としてはシロ糖50 wt.%水溶液を使用し、80°Cに予熱してノズルから供給した。

2. 最大処理流量について

いま、ある一定の条件で流動化している回分流動層にたいして、スプレーノズルから供給するコーティング液の量を増加させていくと、はじめ良好な流動状態でコーティングされていたものが、ある液量以上になるとしだいに円滑に流動化しなくなり、ついには粒子の混合が停止するようになる。このときの液量を最大処理流量 L_{max} とするが、この状態は供給液量の増加につれて層内粒子の表面における含水率が高くなって粒子同志が付着しあいそのために流動化できなくなったものと考えられる。Parker ら⁶⁾は air-glass sphere 流動層に水を少量投入して含水率の層高さへの影響を検討しているが、流動化が停止する点までには到っていない。

2.1 L_{max} の決定方法

① Fluidized bed ④ Gas distributor
② Spray nozzle ④ Rotary valve

Fig. 1 Experimental apparatus

($T_{Fi}=150$ [°C], $u_F=1.98$ [m/sec], $S_0=33.6$ [kg/hr])
Fig. 2 Example of L_{max} determination

($T_{Fi}=150$ [°C], $S_0=33.6$ [kg])
Fig. 3 L_{max} vs. u_F

($T_{Fi}=150$ [°C], $u_F=1.98$ [m/sec])
Fig. 4 L_{max} vs. S_0

($u_F=1.98$ [m/sec], $S_0=33.6$ [kg])
Fig. 5 L_{max} vs. ΔT_{avg}

L_{max} 時の流動化状態を正確に判定することは非常に困難な問題ではあるが、この実験では流動層の壁近くでスプレー液滴が直接当たらないところに挿入した3/8インチの粒子サンプリング管から採取した各時間ごとのコーティング粒子の含水率変化を測定して判定の基準とした。以下に

実験の一例を掲げてその方法を説明する。

Fig. 2 は、送入ガス温度 150°C 、シード量 33.6 kg 、空塔ガス速度 1.98 m/sec の流動層条件のときの例であるが、実験開始から 10 分ごとに階段状に増加させた供給流量と、同じく 5 分間隔で層内のサンプリング箇所からとりだしたコーティング粒子の含水率の関係を示したものである。含水率ははじめのうち少しずつ徐々に増加するが、ある流量になると急激に増大しそのあとすぐ減少する図のような極大点がみうけられる。これは、はじめ液量の少ないところでは粒子表面から順調にコーティング液中の水を蒸発し乾燥していたものが、液量の増加

によって粒子表面の水が増え粒子同志の付着による粒子の運動低下のために、ノズルから供給された液がノズルの直下——いわゆるスプレーゾーン——のみに集積してサンプリング箇所では乾燥だけが進行するために含水率が低下してくるのを示している。このピーク時の液量がさきのべた L_{max} に相当するが、実験の結果では流動層を肉眼で観察しながら決定した液量とよく一致していた。

2.2 実験結果とその検討

実験は流動層条件として空塔ガス速度、シード（けい砂）量、送入ガス温度を変化させ、それぞれの条件における L_{max} を上記の方法によって決定した。ただしノズル高さについてはベッド上 290 mm の一定条件で行なった。 L_{max} 時における粒子のコーティング量（シード粒子にたいするコーティング物質の重量割合）は各実験によって異なるが、全実験での範囲は $0.025\sim 0.442$ 、平均は 0.207 であった。

はじめに、三つの流動層条件にたいする L_{max} の実験結果を Figs. 3, 4, 5 に示す。Fig. 3 は流動層内平均みかけ温度（裸の熱電対で測った温度）で計算した空塔ガス速度との関係、Fig. 4 ははじめに層内に仕込んだシード量との関係、Fig. 5 は流動層のみかけ温度と粒子温度の差の高さ方向の平均値との関係を表わしたものであるが、結果はいずれも両対数紙上で直線的になるようである。

また、この実験のように回分流動層で、かつ液量が L_{max} 以下での流動化状態は、3 で述べるように粒子の混合状態は完全混合に非常に近いことがたしかめられている。

以上二つの実験結果から考えて、結局 L_{max} を決定する状態というのは層内における粒子・ガス間の熱収支がくずれてきたときに相当していると推察される。粒子・ガス間の交換熱量 Q は

$$\begin{aligned} Q &= u_{Fi} \rho_{Fi} A C_F (T_{Fi} - T_{Fo}) \\ &= L(1-x_L) \lambda_w + \{L x_L C_x \\ &\quad + L(1-x_L) C_w\} (T_p - T_L) \\ &= h_p a V \Delta T_{avg} \end{aligned} \quad (1)$$

であるが、第二式の第二項は第一項に比べて無視できるから、 $h_p a V \Delta T_{avg}$ と $L(1-x_L) \lambda_w$ をすべての実験について両対数紙に点綴すると Fig. 6 のようになる。ここで粒子・ガス間伝熱係数 h_p は、数多い既往の研究の中から、温度差として本実験のようにみかけの流動層温度と粒子温度の差の平均値をとっている Kettenring ら、Sunkoori ら、Anton などの実測値を Frantz¹¹⁾ が整理した次式から算出した。いわゆる“みかけの伝熱係数”である。

$$\frac{h_p D}{k_F} = 0.016 \left(\frac{Du_F \rho_F}{\mu_F} \right)^{1.3} \left(\frac{C_S \mu_F}{k_F} \right)^{0.33} \quad (2)$$

また、 aV と Δt_{avg} はそれぞれ

$$aV = \left(\frac{6S_0}{D_0 \phi_c \rho_s} \right) \left(\frac{D}{D_0} \right)^2 \quad (3)$$

$$\Delta t_{avg} = \frac{1}{z_f} \int_0^{z_f} (T_f - T_p) dz \quad (4)$$

から算出した。Eq.(3) の $(D/D_0)^2$ は、実験が回分流動層で L を階段状に変化させて行なっているため、実験開始後そのときまでにコーティングされて粒子の表面積が増加しているのを補正している。また Eq.(4) の T_p については $T_{Fo} (= T_p$ と考えられる) を用いて計算した。Fig. 6 において同記号のものは同一流動層条件で L を変化させたものの結果であるが、白い記号は L_{max} 以前の 10 分間隔のもの、黒い記号は L_{max} のときのもので Fig. 3, 4, 5 に対応している。 L_{max} 以上では定常的な熱収支が存在しなくなりこれらの実験値の集合からはずれてくるので、この点群が種々の流動層条件にたいする L_{max} を規定することになる。

しかるに、熱収支のとおり縦軸と横軸は本来同じ数値を与えるものであり、ゆえに点群の傾向は係数 1、指数 1 の関係になるべきであるが、この結果では勾配はほとんど 1 に近いが横軸が約 11 倍大きいようである。 aV や Δt_{avg} の算出に大差がないと考えると、結局 Frantz の式から算出した h_p が本実験の h_p より相当大きい値を与えていることになる。この原因としては、流動層の流動状態や流体および粒子物性値の差など流動層伝熱の根本的な問題点が考えられ、解決は今後に残されている。

3. 粒子コーティング量分布について

上のような回分流動層でなく、シード粒子を連続的に供給しコーティング粒子を連続的に排出する連続流動層においては、その排出される粒子のコーティング量には当然何らかの分布が考えられ、この分布を知ることが必要となる。

3.1 実験方法と実験結果

3.1.1 コーティングしない場合の粒子滞留時間分布 はじめに、この実験に用いた流動層の単なる気固系流動層としての混合状態を調べる目的で、コーティング液を全く供給せずシード粒子のみの連続流動層における粒子の滞留時間分布を測定した。その方法としては、シード粒子のガラス球で形成されている連続流動層に瞬間的にトレーサー粒子を投入して、その排出量の時間的な変化を調べるユニットインパルスによる応答法を用いた。結果を粒子の平均滞留時間 $\bar{\theta}$ にたいする各粒子の滞留時間 θ_p の比とトレーサー粒子の積算排出量割合で表わすと、Fig. 7 のように $\bar{\theta}$ に関係なくすべて完全混合

Fig. 6 $L(1-x_L)h_p$ vs. $h_p aV \Delta t_{avg}$

($T_{Fi}=150$ [°C], $\mu_{Fi}=2.25$ [m/sec])

Fig. 7 Residence time distribution of particles with no coating

に非常に近いことがたしかめられた。このときのトレーサー粒子としてはシード粒子のガラス球に赤色染料をうすくコーティングしたものを使用し、また排出粒子中のトレーサー濃度はサンプルを一粒一粒選り分けて決定した。

3.1.2 コーティングする場合の粒子コーティング量分布 シード粒子の連続流動層にコーティング液をスプレーして、定常状態である瞬間における排出粒子をサンプリングし、その各一粒のコーティング量 (シード粒子にたいするコーティング物質の重量割合) を測定して粒子コーティング量分布を求めた。結果を粒子の滞留時間分布と同じような意味で、平均コーティング量 $\bar{x}_c$ にたいする各粒子のコーティング量 x_{cp} の比と積算排出量割合で整理すると Fig. 8 のようになる。点線は粒子滞留時間分布における完全混合理論線に相当するもので、次式で示されるものを表わしているが、実験値はすべていわゆる“二次おくれ”的形状を示しているようである。

$$F(x_{cp}) = 1 - \exp(-x_{cp}/\bar{x}_c) \quad (5)$$

この実験で一粒のコーティング量の測定は、感量 $1 \mu\text{g}$

($T_{Fi}=150$ [°C], $u_{Fi}=2.25$ [m/sec], $H=290$ [mm], $L=18.2$ [kg/hr])

Fig. 8 Coating-ratio distribution of particles with coating

Fig. 9 Flow model of fluidized bed with particle coating

Fig. 10 α , γ and k vs. $\bar{\theta}$

の微量天秤を用いて、コーティング粒子秤量→ショ糖を水洗→乾燥→シード粒子秤量という方法で行なった。またこれらの実験における $\bar{x}_c$ は $0.063 \sim 0.153$ であった。

3.2 実験結果の検討

コーティング液を噴霧している状態の流動層において、流動層の上部にあるノズルから噴霧された液滴が到達することのできる流動層内の位置は、流動層上面とノズルとの距離およびノズルの噴霧角によってある範囲——いわゆるスプレーゾーン——に限られ、それ以外の

位置ではシード粒子は直接噴霧液滴を捕えることがない。しかるにこのスプレーゾーンとそのまわりの主流動層部との間には流動化による粒子の交換があって、このためにコーティングは連続的に進行する。結局スプレーゾーンはコーティング量分布にたいする意味で側容量的傾向をもっていて、そのためにコーティング量分布の実験値は粉体混合などにおいて用いられる側混合モデルと同様なもので表現されるものと考えられる。すなわちコーティング流動層はシード粒子供給部、スプレーゾーンおよび主流動層部で構成される。

矢野・新井ら¹⁰⁾は連続攪拌槽における側混合モデルとして Fig. 9 と類似なものについて検討しているが、ここでは各槽の物質収支を基礎式として系の伝達関数を求めたのち、

$F(x_{cp})$ vs. $x_{cp}/\bar{x}_c$ の関係を得るためにインディシヤル応答を求め、かつ時間のかわりにコーティング量を導入すると次式が得られる。

$$F(x_{cp}) = 1 - \frac{1}{2(1-p_1\alpha)} \left\{ 1 + \frac{k(1-\alpha)-\gamma}{\sqrt{p}} \right\} \exp \left(-p_1 \frac{x_{cp}}{\bar{x}_c} \right) - \frac{1}{2(1-p_2\alpha)} \left\{ 1 - \frac{k(1-\alpha)-\gamma}{\sqrt{p}} \right\} \exp \left(-p_2 \frac{x_{cp}}{\bar{x}_c} \right) - \frac{\alpha(\gamma-k\alpha)}{\gamma^2 - (\gamma-k\alpha)(1-2\alpha)} \exp \left(-\frac{1}{\alpha} \cdot \frac{x_{cp}}{\bar{x}_c} \right) \quad (6)$$

ただし

$$p_1, p_2 = \frac{(k+\gamma-k\alpha) \mp \sqrt{p}}{2\gamma(1-\alpha-\gamma)} \\ p = (k-\gamma-k\alpha)^2 + 4k\gamma^2$$

各条件における実験値から、矢野・新井らと同様な図による方法でモデルパラメータ α , γ , k を算出して計算した応答曲線を Fig. 8 に付記した。それぞれ次式を表わしている。

$$A: F(x_{cp}) = 1 - 2.36e^{-1.53x_{cp}/\bar{x}_c} + 0.0242e^{-11.46x_{cp}/\bar{x}_c} + 1.37e^{-2.50x_{cp}/\bar{x}_c} \quad (7)$$

$$B: F(x_{cp}) = 1 - 1.16e^{-1.15x_{cp}/\bar{x}_c} + 0.105e^{-9.97x_{cp}/\bar{x}_c} + 0.0744e^{-4.17x_{cp}/\bar{x}_c} \quad (8)$$

$$C: F(x_{cp}) = 1 - 1.05e^{-1.05x_{cp}/\bar{x}_c} + 0.199e^{-10.95x_{cp}/\bar{x}_c} - 0.150e^{-7.14x_{cp}/\bar{x}_c} \quad (9)$$

最後に、 α , γ , k の計算結果を $\bar{\theta}$ にたいして図示すると Fig. 10 となり、次のことが考察される。

(i) α については、 $\bar{\theta}$ 大となるにつれて減少し、 $\bar{\theta} \rightarrow \infty$ となれば回分式になることから最終的にはある $\bar{\theta}$ 以上で $\alpha=0$ となるものと考えられる。

(ii) γ については、 $\bar{\theta}$ 大となれば増加し、 $\bar{\theta} \rightarrow \infty$ では

流動層内はすべてスプレーゾーンとなり $\gamma=1$ ($\alpha=\beta=0$) となるものと考えられる。

(iii) k も $\bar{\theta}$ 大となれば増加するが、理論的には $\bar{\theta} \rightarrow \infty$ で $k \rightarrow \infty$ となるものと考えられる。

結 言

気固系流動層とスプレーノズルを組合わせる操作のうち粒子表面をコーティングする方法について、流動層にスプレーノズルでコーティング液を供給して、最大処理液量と連続流動層における排出粒子のコーティング量分

布について検討した。その結果

(1) 流動層の流動化が停止する点として定義される最大処理液量は、供給液量の増加によって層内粒子の表面における含水率が高くなり粒子同志が付着する状態で与えられるものと考え、結局層内での粒子・ガス間の熱収支のみで決定されるものと推論して、実験値を整理した結果、これを確認した。

(2) 連続流動層における排出粒子のコーティング量分布が、粉体攪拌槽での滞留時間分布などと同様な側混合モデルで表現できることを見出し、シード粒子の平均滞留時間とモデルパラメータ間の関係を明らかにした。

Nomenclature

A : cross sectional area of fluidized bed [m ²]	T_{Fi} : inlet gas temperature [°C]
a : particle surface area in unit volume of fluidized bed [m ² /m ³]	T_{Fo} : outlet gas temperature [°C]
C_F : specific heat of fluidized gas [kcal/kg·°C]	T_f : apparent temperature of fluidized bed [°C]
C_s : specific heat of coated particles [kcal/kg·°C]	T_L : temperature of spray droplets [°C]
C_W : specific heat of water [kcal/kg·°C]	T_p : temperature of fluidized particles [°C]
C_x : specific heat of coating material [kcal/kg·°C]	Δt_{avg} : mean temperature difference defined by Eq. (4) [°C]
D : coated particle diameter [m]	u_F : superficial gas velocity [m/sec]
D_o : seed particle diameter [m]	u_{Fi} : superficial velocity of inlet gas [m/sec]
F : feed rate of seed particles [kg/hr]	V : volume of fluidized bed [m ³]
F' : rate of accumulated discharge quantity [—]	w_p : moisture content of coated particles [% DB]
H : nozzle height from distributor [m]	$\bar{x}_c$: mean coating-ratio of coated particles [kg/kg]
h_p : heat transfer coefficient between gas and particles [kcal/m ² ·hr·°C]	x_{cp} : coating-ratio of a coated particle [kg/kg]
k : model parameter from Fig. 9 [—]	x_L : concentration of the solid in coating liquid [kg/kg]
k_F : thermal conductivity of fluidized gas [kcal/m·hr·°C]	z_f : height of fluidized bed [m]
L : feed rate of coating liquid [kg/hr]	α, β, γ : model parameter from Eq.(9) [—]
L_{max} : maximum feed rate of coating liquid [kg/hr]	θ : time [min]
p_1, p_2, p : constant from Eq.(6) [—]	$\bar{\theta}$: mean residence time of particles [min]
Q : heat flow between gas and particles [kcal/hr]	θ_p : residence time of a particle [min]
S_o : quantity of seed particles [kg]	λ_w : latent heat of water [kcal/kg]
	μ_F : gas viscosity [kg/m ² ·hr]
	ρ_{Fi} : inlet gas density [kg/m ³]
	ρ_s : density of seed particles [kg/m ³]
	ϕ_c : shape factor of a coated particle [—]

Literature cited

- 1) Frantz, J.F.: *Chem. Eng. Progr.*, **57**, 35 (1961)
- 2) Grimmett, E.S.: *A. I. Ch. E. Journal*, **10**, 717 (1964)
- 3) Grimmett, E.S.: IDO-14650 (April 1966)
- 4) Harada, K. and Fujita, J.: *Chem. Eng. (Japan)*, **31**, 790 (1967)
- 5) Jonke, A. A., Petkus, E. J., Loeding, J. W. and Lawroski, S.: *Nuclear Sci. and Eng.*, **2**, 303 (1957)
- 6) Lee, B. S., Chu, J. C., Jonke, A. A. and Lawroski, S.: *A. I. Ch. E. Journal*, **8**, 53 (1962)
- 7) Metheny, D. E. and Vance, S. W.: *Chem. Eng. Progr.*, **58**, 45 (1962)
- 8) Parker, H. W. and Stevens, W. F.: *A. I. Ch. E. Journal*, **5**, 314 (1959)
- 9) Vanecek, V., Markvart, M. and Drbohlav, R.: *Brit. Chem. Eng.*, **7**, 503 (1962)
- 10) Yano, T., Sano, Y., Arai, C. and Katsuma, T.: The 31 th annual meeting (the Society of Chemical Engineers, Japan), Tokyo, 413 (1966)

2成分系凝縮曲線の簡易測定法（小島和夫・加藤昌弘・須永 晴・橋本征一，化学工学，32，337～342（1968））
2種類の純成分飽和蒸気を定圧下でまた近似的な断熱条件下で混合させ、蒸気混合物の温度測定より、2成分系凝縮曲線を実測する簡易法を提案した。最低および最高共沸系を含む6種の2成分系について凝縮曲線を実測し、文献値と比較したところ両者の一致は良好であり、本簡易測定法が使用に耐えうるものであることを確かめた。また凝縮曲線に基づき、無限希釈の活量係数および沸点曲線の計算式を求め、検討を行なった。

気流流動層における気泡対の相互作用（志知章・森滋勝・榎 巖，化学工学，32，343～348（1968））
二次元流動層で、2個の気泡（気泡対）の挙動および気泡周辺の粒子の運動について写真撮影と理論解析を行なった結果、気泡対の相互位置がガスおよび粒子の流動特性に大きな影響を与えることを定量的に明らかにした。気泡間の相互作用は相互の位置が垂直に近くなるほど強くなり、気泡の合体も起りやすくなること、また気泡対周辺のガスの流れは、循環流だけでなく、気泡対を流通する吹き抜け流れが生じることがわかった。

流動層による粒子のコーティング——最大処理流量および粒子コーティング量分布について——（原田和夫・藤田仁四郎，化学工学，32，349～353（1968））
流動層にコーティング液を供給して粒子をコーティングする方法について検討した。その結果（i）流動層の流動化が停止する点として定義される最大処理流量は層内での粒子・ガス間の熱収支のみで決定されるものと推論し、実験からこれを確認した。（ii）連続流動層での粒子コーティング量分布が、粉体攪拌槽での滞留時間分布などと同様な側混合モデルで表現できることを見出し、シード粒子の平均滞留時間とモデルパラメータ間の関係を明らかにした。

ガスクロマトグラフ装置による分子拡散係数測定に対する考察（新井邦夫・斉藤正三郎・前田四郎，化学工学，32，354～359（1968））
ガスクロマトグラフ装置によって分子拡散係数を求める際主問題となる点は、試料の注入容積あるいは注入時間、並びに試料注入箇所および検知器内における流れの乱れ等である。ここではこれらの因子が、Sample gas の滞在時間分布曲線より求める分子拡散係数の測定誤差に及ぼす影響について解析的検討を加え、test section として必要な最小長さを求める目安を与えた。

パイプトレイについて（小原幸雄・徳田雅寛・割田健一郎・若林芳和，化学工学，32，359～364（1968））
細長いスリットの上に小さなパイプを載せた新しいバブル型のトレイ（パイプトレイ）の圧損失と効率を他の型のトレイ（バブルキャップトレイ、シーブトレイ、バルブトレイ）と比較するための実験を行なった。圧損失は塔径 500mm の塔で水-空気により、効率は塔径 310mm の塔でベンゼン-トルエンの蒸留により測定し

た。実験の結果

- 1) パイプトレイの乾き圧損失は Eq. (2) で表わされる。
 - 2) パイプトレイの効率はシーブトレイやバルブトレイと同程度である。
- との結論を得た。

固定層および流動層におけるベンゼンの水素化反応について（越後谷悦郎・豊田研二・森川 清，化学工学，32，364～369（1968））
ニッケル・シリカ触媒によるベンゼンの水素化反応を固定層および流動層で行ないその結果を比較した。転化率の低い範囲では固定層と同一の値が得られ、転化率の高い範囲では流動層の方が小さい値として得られた。この原因を確めるためトレーサ法を適用し流動層内の接触時間分布を測定し、これにより固定層と流動層とのずれを説明した。

混合時間、動力消費およびフローパターンの三つの関連から見た乱流攪拌槽の構造（竹田邦彦・星野照彦・清水克夫・西畑達男，化学工学，32，363～375（1968））
1) タービン型インペラーを用いた乱流攪拌槽の、パッフルの形状・寸法、インペラーの取付高さなどを変えたときの、混合時間、攪拌トルクおよびフローパターンなどを同一の装置について測定して、種々の構造のもつ特性の相互関係をしらべた。
2) フローパターンの新しい分類を提案した。この新分類によって攪拌トルクの変化とフローパターンの種類とが関連づけられるようになった。

多段インペラーによる深い槽の乱流攪拌（竹田邦彦・星野照彦・田口英昭・藤井武，化学工学，32，376～381（1968））
液深が径の数倍ある深い攪拌槽を多段インペラーによって攪拌する場合の混合特性はいまだほとんど研究されていない。本研究は、これを補う最初の試みとして、インペラーの相対位置を変えて、混合時間、攪拌トルクおよびフローパターンを実験的に調べたものである。その結果、インペラーの相対位置はこれらの特性に対して著しい影響をもつことが判明した。そして、フローパターンと関連せしめることによって、攪拌トルクおよび混合時間の変化を定性的に説明つけた。

共沸蒸留における最少還流比と還流液組成の決定について（頼実正弘・吉村尚真，化学工学，32，382～383（1968））
イソプロピルエーテルを共沸剤とするイソプロピルアルコール-水-イソプロピルエーテル系の共沸蒸留において、最少還流比を決定した。他の系に対して先の文献でのべたと同様に、この系についても、塔底組成がほぼ純粋なイソプロピルアルコールの場合には、種々の塔底組成に対するピンチポイントの軌跡は、 $\alpha_{EW}=1.0$ の軌跡とみなすことができることを確かめた。最少還流比は $\alpha_{EW}=1.0$ の曲線と供給線の交点から決定され 6.68 であった。また還流液組成も、各種還流比に対して図式決定されることを示した。