異相接触界面における物質移動に関する研究*

平 田 彰**

このたびは栄えある化学工学協会論文賞を受賞し、大変光栄に存じます。

移動速度論の研究を始めたのは学部4年生のとき卒業論文の指導教授である城塚教授から指示を受けてからでした。当時米国では1955年の工学教育評価委員会の最終報告で、工学基礎の重要性が強調され、その体系化と内容の充実のため、翌年全ての工学分野のなかで、七つの工学基礎に関して特別の研究班が組織されましたが、その一つに移動速度論が入っていたのです。その報告書を手渡されたとき、Transport Phenomenaという始めてきく言葉に、まさか運送屋みたいな仕事をするのでは？と、いまでこそ笑い話ですが、当時は深刻に考えてしまった程でした。以来15年間、主としてこの分野の研究をして参りました。受賞の対象となった論文はこれら一連の研究の一つの断面で、五つの論文を自分なりに分類してみると、界面が静止している場合と流動している場合の二つに分けることができます。以下この分類にしたがって記念講演の概略を記します。

1. 静止界面からの物質移動

界面が動かず静止している場合の典型的な例は固体表面の場合である。固体からの物質移動を考えると、従来から他分野で研究が進んでいる運動量・熱移動から、アナロジー理論によって類推することがかなり有効な手法となる。したがって、このアナロジー理論の適用限界外の現象が化学工学では重要となってくる。初めの二つの論文はこの観点から行なわれた研究に基づいている。

1.1 物質移動におよぼす濃度推進力の影響⁹⁾

化学工学の研究目的の一つとして、ある特定成分の物質流束 mass flux をコントロールする（すなわち、増加させるか、または減少させる）という課題がある。接触装置の高性能化ということは取りも直さず、物質流束の増加を計ることに他ならない。界面からの物質流束が大きくなると、界面近傍の流れの状態が変化し、このため物質移動それ自身が影響を受ける。

そこで、模型として、前縁が20°、直径約2cmの円柱状の樟脳模型を使用して、融点付近の温度に至るまでの高温気流中への樟脳の昇華速度を実測した。実験は模型上に層流境界層が形成する流動条件下で行なった。得られた結果によれば、物質移動速度はレイノルズ数の1/2乗に比例して増加する。この結果は後述の何れの研究においても、流れが層流境界層である限りにおいて成り立つ。一般的に物質移動速度は流れが層流境界層の場合は Re 数の1/2乗に比例し、乱流境界層の場合は4/5乗に比例し、もしこの両者以外の影響を示した場合には、そこに何か他の影響因子が関与しているのではないかと考えられる。

次に Fig. 1 に物質移動におよぼす無次元濃度推進力 Transfer number B の影響を示した。Fig. 1 によれば物質移動速度は濃度推進力に大きな影響を受けることが判る。ただ実際上の問題としては自由流れ中の濃度 w_∞ が無視小の場合はあまり問題はないが、飽和濃度 w_w に近くなると物質流束は予想される値よりはるかに小さくなる。従来経験的に非拡散成分濃度の影響とされていた

Fig. 1 Effect of driving forth on mass transfer

* 昭和48年4月20日受理

** Akira Hirata (正会員) 早稲田大学 理工学部 応用化学科 化学工学分科

Tolene

$u_{\infty}=486\text{ cm/sec}$
 $T_s=25.1^{\circ}\text{C}$

$u_{\infty}=1,282\text{ cm/sec}$
 $T_s=30.9^{\circ}\text{C}$

Ethylether

$u_{\infty}=484\text{ cm/sec}$
 $T_s=22.1^{\circ}\text{C}$

$u_{\infty}=1,290\text{ cm/sec}$
 $T_s=22.1^{\circ}\text{C}$

Fig. 2 Some photographs of sinchroscope traces for surface temperature change with vaporization

ものはこの範疇で論ずることができる。これに関する従来の実験結果はまちまちだったが、最近これらを統一的にまとめ上げ得ることが判ったので、これについては追って論文投稿の予定である。

1・2 相変化エネルギーの関与——瞬間的局所物質移動速度の測定法¹²⁾——

物質流速が大きくなると、相変化に要するエネルギー

が大きくなり、表面におけるポテンシャル、すなわち、濃度推進力が小さくなり、したがって物質流速それ自身が減少するという一種の自己抑制作用ともいべき現象が生ずる。この問題を考えている頃、衝撃波管内で生ずる物質移動の瞬時現象を定量的に測定する必要に迫られていた。そこで、この相変化に伴うエネルギー遷移を利用して局所的位における瞬時の物質移動速度を測定する手法を考案した。

測定手法の原理は、物質移動を伴う場合と伴わない場合の固体表面における伝導伝熱速度の差を測定して、相変化に伴うエネルギー遷移速度を求めるというものである。伝導伝熱速度は熱絶縁性基盤表面上に蒸着した薄膜抵抗温度計により測定することができる。すなわち、半無限広りの固体に関する一次元非定常熱伝導方程式を、固体表面温度が時間的に任意に変化する場合について解くことにより、薄膜抵抗体両

端の電位差の経時変化 $E(t)$ を測定して、伝導伝熱速度および表面温度変化を算出することができる。

実験に使用した模型は、幅：45 mm、長さ：90 mm、厚さ：10 mm、前縁先端角度 10° の平板模型である。材質は微細な細孔（平均孔径：約 0.5μ 、気孔率：約 20%）を有する多孔質物質で、これにあらかじめしみ込ませた有機溶剤を空気流中に蒸発させた。薄膜抵抗体は、前縁先端より 40 mm のところに、幅：0.1 mm、長さ：30 mm、厚さは熱容量が無視できるように、 10^{-3} mm 以下とした。

Fig. 2 は抵抗体両端の電位差の経時変化をシンクロスコブにより検出し、写真撮影したものの一例である。

Fig. 3 は上記の写真より、得られたデータを両対数方眼紙上に点綴したものである。Fig. 2 および 3 より、①相変化に伴うエネルギー遷移速度は物質移動速度に直接的に比例すること；②熱流速が一定の場合、現象変初期の段階では、表面の温度変化は経過時間の $1/2$ 乗に比例すること；③蒸発が生ずると相変化エネルギーのため表面温度が減少し、したがって表面の飽和蒸気圧、すなわち推進力が減少し、蒸発速度それ自身が減少すること等々が判る。

以上より物質移動係数を算出し、既往研究結果と比較したところ、非常によく一致していることが確かめられた。また薄膜抵抗体中の熱の拡散時間と遅れ時間を検討

【受賞者紹介】 平 田 彰

昭和 9 年 9 月 福島県会津若松市に生まれる。

昭和 28 年 3 月 県立会津高校卒業後、同年 4 月早稲田大学理工学部数学科に入学、翌 29 年応用化学科に転科、33 年 3 月めでたく卒業。

昭和 38 年 3 月 同大学大学院博士課程修了、同時に工学博士（早大）授与。引続き助手として奉職、専任講師、助教授を至て

昭和 48 年 4 月 教授に昇格。現在理工学部の学生担当教務副主任として 7,000 人の学生の面倒を主任と 2 人でみています。

その間、45 年 6 月より 47 年 3 月までカナダ、トロント大学研究員として海外留学。

家 族 娘（小学校 6 年生）、息子（3 年生）と愛妻の 4 人家族。

趣 味 ユート困ったナー。好きなことなら、庭いじり、写真、ザル基、遠泳……いっぱい有るんですケド。

したところ、この測定法は約 $10 \mu\text{sec}$ 程度の瞬間現象にも適用できることが推定された。このことより、本測定法は局所的位における瞬時の物質移動速度の測定法として十分適用できるものとする。なおこの測定法を使用して、衝撃波管内の瞬時の物質移動現象を検出することができたが、その結果は文献⁷⁾に報告した。

2. 流動界面からの物質移動

流体-流体間物質移動は諸現象を構成する種々の要素が複雑にからみ合い、固体-流体間の移動現象より問題を一層難かしくしている。そこでまず3種の構成要素、すなわち、① 移動速度を支配するポテンシャルが時間的に変化する場合 ② 外部流れと平行な異相接触界面の流れを伴う場合 ③ 流速が音速を超え、圧縮性流体として取り扱わねばならない場合を取り上げて、これらの構成要素が組合さったときの平板上の二次元流境界層方程式の解析を行なった。次に界面流動を伴う場合の解析を液滴系および気泡系の物質移動に拡張展開した。

これらの構成要素の中で、最も興味を持っていたのが界面速度でした。私が始めて界面の流動に興味を持ったのは1954年に発表された J.B. Lewis⁴⁾の論文を読んだときでした。この論文は当時、物質移動係数は拡散係数の何乗に比例するかということで一大論争を巻き起した論文でした。このことに興味を持った他にもう一つ不思議だったことは、攪拌槽型の平面接触の物質移動において、上相、下相を並流方向に攪拌したときに、向流とほとんど変わらず物質移動速度が非常に大きいということでした。並流ならば攪拌効果は互に相殺されて物質移動速度はそれ程大きくならない筈だと思っておりまして、何とも不思議で何度もその論文に眼を通し、何故だろう、何故だろうと考え込んでしまいました。そのあげく界面の流動を考慮しなければならぬのではないかと思いついたのです。それで種々計算を試みましたが計算結果が以外と Lewis の実験結果を説明していることが判り、第一回総合シンポジウムに発表⁵⁾しましたが、それでも自分自身では半信半疑でした。界面流動に一層興味をかりたてられたのは、それからまもなく、藤縄先生の上昇液滴からの物質移動のシュリーレン写真の映画を見せて戴いたときからでした。汚染系では液滴が剛体化し、液滴内の循環流が停止して物質移動速度が減少するという事実を映画で見て、ますます界面流動の重要性を知ったわけです。しかし、それでも、界面が流動していたとしても、単に外部流れと界面速度との相対速度を取ればよいのではないかと、そうなれば、向流のとき物質移動速度は大きく、並流のとき小さいということになる Lewis の実験事実とは逆の推論にときどき思い悩まされてしまいました。しかし、後述の基本式(1)式を眺めていたとき、(1)式は非線形形ですので、(1)式の基本式が成り立つかぎりにおいて、相対速度で考えては絶対にいけない筈だということに気がついて、ようやく決心がついて重い腰をあげて解析に進んだのです。

2.1 表面濃度が変化し、かつ界面流動を伴う場合の圧縮性非定常物質移動速度の解析⁶⁾

前述の3種の構成要素の組合せを包含する基礎方程式

Fig. 3 Some experimental results for voltage variation $E(t)$ vs. time t for toluene vaporization

と境界条件として次式から出発した。

$$\frac{\partial(\rho u)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho v)}{\partial y} = 0 \quad (1)$$

$$\rho \left(u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} \right) = \frac{\partial}{\partial y} \left(\mu \frac{\partial u}{\partial y} \right) \quad (2)$$

$$\rho \left(\frac{\partial W}{\partial t} + u \frac{\partial W}{\partial x} + v \frac{\partial W}{\partial y} \right) = \frac{\partial}{\partial y} \left(\rho D \frac{\partial W}{\partial y} \right) \quad (3)$$

$$P = \rho R T \quad (4)$$

$$t < 0, y = 0: w = w_\infty \quad (5)$$

$$t \geq 0, y = 0: u = u_w, v = 0, w = w_w \quad (6)$$

$$y = \infty: u = u_\infty, w = w_\infty \quad (7)$$

ここで、 $W = (w - w_\infty) / (w_w - w_\infty)$

これらの式を全ての時間領域で closed form の形で解くことは不可能なので、時間領域を三つの範囲、すなわち、① 時間があまり経過しないとき ② 時間がかかなり経過して定常状態に近いとき ③ その中間領域、に分けた。①、②の範囲では級数解の形でそれぞれの極限解を求め、③では、両極限解を使用して近似解を求めた。解の導出過程および結果の詳細は割愛し、ここでは、結果として得られた2, 3の知見を述べる。

まず、経過した時間が非常に短い間での解析解の第一項として次の(8)式を得た。

$$\frac{(1 - w_w) Sh}{\sqrt{Re}} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{Sc}{\tau}} \quad (8)$$

ここで、 $\tau = u_\infty t / x$

(8)式から、濃度変化後の初期段階では界面流動に無関係であり、物質移動速度は Sc 数の $1/2$ 乗に比例することが判る。また(8)式は Higbie 式そのもので、対象としている現象が異なるにもかかわらず、得られる結果が同じことは大変興味深い。すなわち、Higbie 式は一般的な非定常現象における一つの極限解であると言える。ただこの場合には経過時間の適用限界があり、 Sc

Fig. 4 Wall boundary layer behind shock wave in shock tube

数大なる程、界面速度の比 u_w/u_∞ が大なる程、Higbie 式の適用し得る時間が短くなる。

次に時間がかかり経過した場合については、次の 3 種の解を得た。① Sc 数小なる範囲の数値解 ② $Sc=1$ における厳密解 ③ Sc 数大なる範囲の解析解である。結果は省略するが、定常状態に達したときの解より、便宜的に近似式を作ってみると次の (9), (10) 式となる。

$$0 \leq \frac{u_w}{u_\infty} \leq 1: \frac{(1-w_w)Sh}{\sqrt{Re}} \\ = 0.332 \sqrt{1 + 1.90 \frac{u_w}{u_\infty} Sc^{\frac{1}{3}} + \frac{1}{6} \left(\frac{u_w}{u_\infty} \right)} \quad (9)$$

$$1 \leq \frac{u_w}{u_\infty} \leq 6: \frac{(1-w_w)Sh}{\sqrt{Re}} \\ = 0.346 \sqrt{1 - \frac{u_w}{u_\infty} + 2.664 \frac{u_w}{u_\infty} Sc} \quad (10)$$

(9) および (10) 式において、物質移動速度におよぼす Sc 数の影響は界面速度の値によって異なることに注目すべきである。すなわち、 $u_w/u_\infty=1$ のとき、物質移動速度は Sc 数の 1/2 乗に比例し、 u_w/u_∞ が小さくなるにつれ、そのべき数は小さくなり、静止界面、すなわち、 $u_w/u_\infty=0$ のとき、 Sc 数の 1/3 乗に比例する。したがって、物質移動係数が拡散係数の何乗に比例するかを論ずる際には、界面速度の考慮なしには議論が成り立たないのではないかと考えられる。次に界面速度のおよぼす影響であるが、 Sc 数の指数に影響をおよぼす他に、物質移動速度を著しく促進させるという極めて重要な影響をおよぼすことが指摘できる、なお (9) 式において、 $x/u_\infty=t$ とおくと、 $u_w/u_\infty=1$ のときに、(9) 式はこれまた Higbie 式と同じ式となることも注目に値する。

2・2 衝撃波管壁面上の層流境界層を通しての非定常物質移動への応用¹⁾

衝撃波管内を進行する衝撃波の後の管壁面上には、境界層が形成されるが、いま Fig. 4 に示されるように、座標軸を衝撃波上にとると、壁は衝撃波と同じ速度で逆方向に動いているとみなされ、しかも衝撃波が拡散物質の地点に到達した瞬間に、壁表面濃度が階段状に変化するものとみなされる。したがって、前述の解析結果が、この場合にも、2, 3 の変数変換をするだけでそのまま適

用することができることになる。界面流動を伴う流体-流体間物質移動現象と衝撃波管壁面における物質移動現象とが、その機構においてはほぼ等価に取り扱えることは非常に興味深い。

前述の解析結果を適用すると、マッハ数が増加する程同一の Re 数においては物質移動速度が減少することになる。流速を亜音速から超音速へと増加させるとき、物質移動速度がどう変化するかを調べると、まず亜音速域では物質移動速度は Re 数の 1/2 乗に比例して増加するが、音速の壁を越えると、マッハ数、すなわち圧縮性の影響により、予想した程増加しないことになる。すなわち、ここでも、前述の自己抑制作用が顔をのぞかせているような気がする。

2・3 液滴からの物質移動¹⁰⁾

ここでは、まず、前述の二次元流に関する解析結果を三次元流の液滴系に拡張展開することから始めた。

まず、 $u_w/u_\infty=0$ 、すなわち剛体模型の場合を基準として、その基準値に対して解析結果との比を取り正規化すると、 $0 \leq u_w/u_\infty \leq 1$ の範囲では次の (11) 式が得られる。

$$\frac{Sh}{Sh_0} = \sqrt{1 + 1.90 \frac{u_w}{u_\infty} Sc^{\frac{1}{6}} \left(\frac{u_w}{u_\infty} \right)} \quad (11)$$

流動条件が両者共同である限り、この比 Sh/Sh_0 の値は種々の界面形状に依存しないで適用できるのではないかという一つの相似性を仮定した。この仮定の下では、(11) 式は、水平界面でも、球状の界面でも適用できることになる。ここで、 Sh_0 は同一界面形状を有する剛体模型の Sh 数である。剛体模型の場合には種々の界面形状に関してかなりの研究成果が得られており、例えば、完全球模型については Ranz and Marshall⁵⁾ の式を利用することができる。この式を (11) 式と組合せると次の (12) 式が得られる。

$$\frac{Sh}{\sqrt{1 + 1.90 \frac{u_w}{u_\infty} Sc^{\frac{1}{6}} \left(\frac{u_w}{u_\infty} \right)}} = Sh_0 = 2 + 0.6 Re^{1/2} Sc^{1/3} \quad (12)$$

次に界面速度の比 u_w/u_∞ の値であるが、液滴系の界面速度の実測値は現時点においては残念ながら皆無である。理論解析としては、低 Re 数域の粘性流れに慣性項の影響を考慮した Tayler and Acrivos¹³⁾ の式と、ポテンシャル流れに粘性項の影響を考慮した Chao¹⁾ の式の両極限解があるのみで、 Re 数の中間領域の理論解析はない。両極限解にしても実測値との照合が無いだけにその適用性が疑問視されるが、止むを得ずこれを利用することにする。さらに液滴の界面速度は位置により異なるが、便宜上液滴赤道面の値によって代表されるものと仮定する。さて、 Re 数の中間領域における界面速度の推算式として次の (13) 式の形で近似的に表示できるものと考えた。

Table 1 Previously reported data for continuous phase mass transfer from single drops

Researcher	Key	System		Sc [—]	Experimental results
		disperse phase	continuous phase		
Heertjes, et al.	▲	iso-butanol	water	1,790	$Sh = f_1 Re^{1/2} Sc^{1/2}$ where, $f_1 \propto \frac{\mu_c}{\mu_d + \mu_c}$
	▲	water	iso-butanol	23,600	
Garner, et al.	■	furfural	water	1,070	$Sh = -126 + 1.8 Re^{1/2} Sc^{0.42}$
	□	water	iso-butanol	13,900	
	□	water	ethylacetate	180	
	□	benzyl alcohol	water	1,230	
Griffith	○	ethyl acetate	water	1,115	$Sh = 2 + 1.13 f_2^{1/2} Re^{1/2} Sc^{1/2}$ where, $f_2^{1/2} \propto \frac{\mu_c}{\mu_d} Re^{1/2}$
	○	iso-butanol	water	1,421	
	●	cyclo-hexanol	water	1,378	
	●	cyclo-hexanol	water	1,378	
Thorsen and Terjesen	▽	carbon tetrachloride	water	1,190*	$Sh = -178 + 3.62 Re^{1/2} Sc^{1/3}$
	▽	chlorobenzene	water		
	▽	o-dichlorobenzene	water		
	▽	70%-chlorobenzene	water		
	▽	-30% benzene	water		
	▽	methylene bromide	water		
Hozawa et al.	○	aniline	water	1,100	agree with Griffith's results
	●	furfural	water	973	

* solute: o-nitrophenol

$$\frac{u_w}{u_{co}} = a_1 + \frac{a_2 Re}{a_3 + Re} - \frac{a_4}{\sqrt{a_5 + Re}} \quad (13)$$

(13) 式の形は低 Re 数域では Taylor and Acrivos の式に、高 Re 数域では Chao の式に合致するように置いたもので、 $a_1 \sim a_5$ の 5 個の係数はこれら両極限解から求められる。

以上により、界面流動を伴う液滴からの物質移動係数がまがりなりにも評価できることになる。

Table 1 には既往実験結果を示した。結果の項を見ても判るように、 Sc 数の指数や定数項の値などまちまちの結果が得られており、各自種々な考察を行なっている。原報¹⁰⁾ では Table 1 に示される全ての実験結果と本計算結果との比較をそれぞれ行なったがそれによると本研究結果は既往実験結果とかなりよく一致していることが示された。

Fig. 5 に宝沢氏ら³⁾のアニリン-水系のデータとの比較の一例を示した。まず液滴径が小さいときは Re 数も小さく界面流動はほとんど発達せず、液滴は剛体球に近く、物質移動速度はあまり大きくない。液滴径が大きくなると Re 数も大きくなり、界面流動もかなり発達し、遂にはポテンシャル流れに近くなり、物質移動速度も大きくなる。Fig. 5 はこれらの傾向をよく物語っている。

次に Fig. 6 (1), (2) に Table 1 に示される全ての実験結果と本研究結果との比較を示した。Fig. 6 は (12) 式に従って、諸実験結果を再整理したものである。Fig. 6 によれば、既往実験結果は、高 Sc 数の場合を除き、±40% の精度で、(12) 式により相関できることが判る。この精度は、固体球に関する既往実験結果を Ranz and Marshall の式で相関したときと同程度の精度である。

Fig. 5 Comparison of the theoretical results with the existing data — Hozawa, Tadaki and Maeda's data for aniline drops in water —

なお Fig. 6 には固体球のデータも点綴することができる。

2・4 気泡よりの物質移動¹¹⁾

前述の液滴系の考え方をそのまま気泡系に適用し、2, 3 の実験データと比較した。その一例として、Fig. 7 に Calderbank and Moo-Young²⁾ の気泡攪拌槽に関する実験結果との比較を示した。彼らは気泡系により三つの範囲が存在するとし、小気泡と大気泡ではそれぞれ物質移動係数の値がほぼ一定であり、この両極端の場合は従来の理論で説明できるが、気泡径の中間領域において、物質移動係数が気泡径にはほぼ比例して増加する現象は従来の理論では何れも説明できないと述べている。本研究結果はこれら 3 領域の現象をよく説明していることが判る。なお Fig. 7 の範囲より大なる気泡径では $u_w/$

(1) for Hozawa, Tadaki and Maeda's data

(2) for the other existing data

Fig. 6 Correlation of continuous phase mass transfer coefficient for single drops

$u_{\infty} \approx 1$ となり、この場合は物質移動係数は気泡径が増加するにつれ逆に減少するようになる。したがって一般的に、ある気泡径において物質移動係数の極大値が存在することになる。これは、気泡上昇速度に最大値が存在することに依存するが、これも前述した自己抑制作用の一種とも考えられる。

Fig. 7 Some comparisons with Calderbank and Moo-Young's data for continuous phase mass transfer from bubbles in aerated mixing vessels

以上、数々の大胆な仮定を含んでおり、厳密な評価にはなお多くの問題を残している。しかし、固-流体系、液-液系および気-液系の3接触においては、界面速度という次元で統一的に論じ得ると考えられる。さらに界面流動を伴う異相接触界面における物質移動現象を研究する場合には、理論的および実験的研究とともに、界面速度を考慮した上で行なうことが必須の条件であり、これに基づいた上で、他の重要因子、例えば、界面攪乱、界面抵抗、界面汚染、界面反応、変形、振動等々の影響を検討しなければならないことが指摘される。

移動速度論は平衡論とともに、全ての化学装置・プロセスの工学的解析・設計・開発などの基礎として極めて重要であるとの一般的認識がかなり広まって参りましたが、この基礎論を直接応用して現実問題を解決するという段階には、残念ながらまだ立ち至っていないといわざるを得ません。しかし、私は未経験のことに對する創造的開発、研究能力の自己開発の根源として、現在すでに重要な基礎論としての位置を占めているものと考えています。将来、他分野の研究発展と相俟って、基礎論から出発して、未経験のことも、直接的に現実問題の解決や新しいアイデアの開発が可能となる手法が確立されて行くものと信じております。これらは地道な仕事ですが、今後とも努力を続けて行く積りでおります。

最後に、学部4年生の卒業論文のとき以来今日まで15年間、全ての面でいろいろご指導下さいました早稲田大学、城塚正教授に心から厚く御礼申し上げます。また、多くのかたがたのご協力があったればこそで、それらのかたがたにも厚く御礼申し上げます。

Nomenclature

$a_1 \sim a_5$ = constant	[—]
B = transfer number, $B \equiv (w_w - w_{\infty}) / (1 - w_w)$	[—]
D = diffusion coefficient	[cm ² /sec]
d_e = equivalent spherical diameter	[cm]
k = mass transfer coefficient	[cm/sec]
E = eccentricity	[—]
$E(t)$ = voltage variation	[volt]

Re = Reynolds number, $Re \equiv d_e u_{\infty} \rho / \mu$ or $x u_{\infty} \rho / \mu$	[—]
Sc = Schmidt number, $Sc \equiv \mu / \rho D$	[—]
Sh = Sherwood number, $Sh \equiv k d_e / D$ or $k x / D$	[—]
T = temperature	[°C]
t = time	[sec]
u, v = velocities parallel to x and y coordinates, respectively	[cm/sec]

u_t	= terminal velocity	[cm/sec]	τ	= dimensionless time	[—]
w	= mass fraction	[—]	<Subscripts>		
W	= dimensionless concentration	[—]	0	= condition at $u_w/u_\infty=0$	
x, y	= coordinates parallel to and normal to interfacial surface, respectively	[cm]	s	= shock conditions	
μ	= viscosity	[gr/cm $\cdot$ sec]	w	= wall conditions or interface conditions	
ρ	= mass density	[g/cm 3]	∞	= free stream conditions	

Literature cited

- 1) Chao, B. T.: *Phys. of Fluid.*, **5**, 69 (1962)
- 2) Calderbank, P. H. and M. B. Moo-Young: *Chem. Eng. Sci.*, **19**, 485 (1964)
- 3) Hozawa, M., T. Tadaki and S. Maeda: *Kagaku Kōgaku*, **34**, 315 (1970)
- 4) Lewits, J. B.: *Chem. Eng. Sci.*, **3**, 248, 260 (1954), **4**, 291 (1955)
- 5) Ranz, W. E. and W. R. Marshall, Jr.: *Chem. Eng. Prog.*, **48**, 141 (1952)
- 6) Shiotsuka, T., A. Hirata and S. Gotoh: Preprint of First General Sympo. of S. Ch. E. Japan, p.156 (1962)
- 7) Shiotsuka, T. and A. Hirata: Semi. International Sympo. Papers., Heat Transfer, Thermal Stress, Vol. I, Paper No. 218, 145 (1967)
- 8) Shiotsuka, T., A. Hirata and K. Sakai: *Kagaku Kōgaku*, **33**, 168 (1969); *Int. Chem. Eng.*, **9**, 546 (1969)
- 9) Shiotsuka, T. and A. Hirata: *ibid.*, **34**, 904 (1970)
- 10) Shiotsuka, T. and A. Hirata: *ibid.*, **35**, 78 (1971)
- 11) Shiotsuka, T. and A. Hirata: *ibid.*, **35**, 123 (1971)
- 12) Shiotsuka, T. and A. Hirata: *J. Chem. Eng. Japan*, **3**, 176 (1970)
- 13) Taylor, T. D. and A. Acrivos: *J. Fluid Mech.*, **18**, 466 (1964)

技術賞

大型重合器による塩ビ重合技術の開発・工業化と

ハイアラキーシステムの実用化*

中 川 充**・武 城 昭 夫**
小 柳 俊 一**・荒 井 秀**
清 野 順 一**

1. 緒 言

信越化学工業(株)が、本プロセスを開発工業化するに至るまでの経緯は、大別して次の3段階より成る。

第1段階…昭和38年より昭和41年迄の期間で、主として、重合反応の基礎研究と、ユニットプロセスの基本的な技術開発、および、計装制御の基礎開発の時期である。この段階で、塩化ビニルの重合反応、工業化プラン

トのプロセスエンジニアリング、計装設計に対して、独創性のある技術が基本的に確立され、スケールアップに対する基準も設定された。

第2段階…昭和40年より昭和42年迄の期間で、主として、上記基本技術の工業プラントに対する応用テストの時期である。最初に、20M 3 、30M 3 の重合器を有するプラントに対して、工業化した効果が確かめられ、改良された。ついで、35M 3 の重合器を有するプラントの工業化で、スケールアップ基準の精度の確認、重合に対するシーケンスコントロールの応用などが行なわれた。最終的には、130M 3 の重合器を主体とするパイロットプ

* 昭和48年4月2日受理

** Mitsuru Nakagawa, Akio Bujo, Shunichi Koyanagi, Shigeru Arai, Junichi Kiyono 信越化学工業(株)