

氏 名	かみわ の みつ お 上 和 野 満 雄
授 与 学 位	工 学 博 士
学 位 授 与 年 月 日	昭 和 5 0 年 5 月 7 日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項
最 終 学 歴	昭 和 3 3 年 3 月 岩手大学工学部鉱山学科卒業
学 位 論 文 題 目	攪拌槽内における高粘性流体の流動と混合特性
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 大谷 茂盛 東北大学教授 前田 四郎 東北大学教授 梅屋 薫 東北大学教授 斎藤正三郎

## 論 文 内 容 要 旨

本論文は7章よりなっている。以下、各章ごとにそれぞれの内容を概説する。

### 第1章 緒 論

近年、高分子工業の急速な発展にともない、攪拌操作や攪拌装置の高性能化に対する技術的な要求は、高度なものになっており、工学的諸理論に基づいた体系化が望まれている。

しかしながら、攪拌操作の中で最も基礎的課題である流体混合に関しては、現象の複雑性と測定困難性などの理由から、ほとんど解明されておらず、不明確な処が多く残されている。したがって、攪拌槽内の混合現象を定量的に表現し、装置の混合特性を合理的に評価するに至ってはかならずしも十分なものといえないのが現状である。

このような実情に応えるため、本研究では、まず攪拌槽内における高粘度液の流動と流体混合

現象の関連性を巨視的及至微視的空間に至るまで、定量的に測定して究明する。ついで、攪拌槽内の混合現象を解析的に表現して装置の混合性能を評価することを目的として行った。

なお、本研究ではTable 1-1に示すように、攪拌槽内の均一化に影響をおよぼす諸因子を明確にして検討した。

すなわち、攪拌装置の混合特性を合理的に評価するためには、同表の項目に示す諸事項を逐一明らかにしておき、これらの総合的効果を考慮して解析的に表わすことが肝要であると思われる。

Table 1-1 攪拌槽内における高粘度液の均一化に影響をおよぼす諸因子

項 目	均一化に影響する諸因子
対象の高粘度液の種類と液の物性	流動特性；ニュートン流体，非ニュートン流体の区別 溶質の分子拡散係数；混合二液の液粘度の差違
流体の混合機構	対流による分割，分散作用と分子拡散による均一化作用；両者の役割あるいは両者の総合的効果
装置特有の混合機構	装置の幾何学的形状に起因する対流の分割，分散作用，濃度むら配列状況，死空間の有無，大小
混合操作	攪拌翼の回転数 溶質の投入液量および投入形態，装置内の幾何学的配置 投入液の分割操作

## 第2章 高粘性高分子溶液における低分子溶質の混合拡散

### —— 主として分子拡散の影響 ——

攪拌槽内における高粘度液の均一化速度に溶質の分子拡散が寄与する度合を，系統的な実験の説明で明確にした。

まず，ポリビニールアルコール水溶液および水あめ液におけるKCl溶質の拡散係数Dを測定した結果，水あめ液中では拡散係数Dは液の粘度には $\nu$ 逆比例の関係となるが，ポリビニールアルコール水溶液中では液の粘度に左程関係なくほぼ一定値の拡散係数Dを示すことが認められた。

つぎに，この両液を攪拌液として用い，KCl溶質をトレーサとして電気伝導度法によって案内円筒付らせん軸翼攪拌装置における均一化速度の測定を行い，それぞれの結果を比較検討して，均一化速度におよぼす分子拡散の影響する度合を明らかにした。すなわち，KClの拡散が顕著に行われるポリビニールアルコール水溶液を用いた攪拌の場合には，KClの拡散が微弱な水あめ液の場合に比べて槽内における均一化速度は著るしく大であることが認められ，低分子溶質の

分子拡散が槽内の均一化に寄与することが明らかとなった。

ついで、着色したトレーサ液を用い、種々の攪拌槽内の混合の進行状況を観察し、対流内部の剪断による変形、移動および配列の効果と分子拡散の効果と分子拡散の効果が均一化速度に如何に重畳されるかを検討し、攪拌装置別にポリビニールアルコール水溶液における分子拡散の寄与の相違を明らかにした。攪拌速度が遅い場合、分子拡散が顕著なポリビニールアルコール水溶液の均一化時間 $T_{MC}$ は、対流混合の効果に重畳して分子拡散による均一化への影響が大きく現われてくるため、均一化時間 $T_{MC}$ と攪拌翼回転数 $n$ の積は一定とはならないことを見出した。

### 第3章 各種攪拌装置における巨視的混合機構

種々の攪拌装置における対流混合に着目し、これを明らかにするための実験方法と装置特有の混合機構の解析法を検討した。

まず、トレーサは高粘度の液中で分子拡散しないものを用い、槽内の液の循環にともなって混合分散する状況を写真撮影を行った。ついで、現像を行った後、フィルムを光透過法により濃度分析し、観測空間内の平均の未混合部分のスケール $L_{sw}$ を混合経過時間 $t$ に対応させて求めた。この結果に基づき装置の幾何学的形状因子、混合操作条件および槽内の液の循環時間 $T_c$ の諸量を考慮して、未混合部分のスケール $L_{sw}$ の減少速度を与える解析式を得ることができた。

さらに、観測空間内の濃度むらの配列のパターンを与える濃度配列値 $f$ および濃度むらの界面積 $S_A$ の増大を表わす解析式を導出し、種々の攪拌装置の混合機構を解析的に表わすことができた。

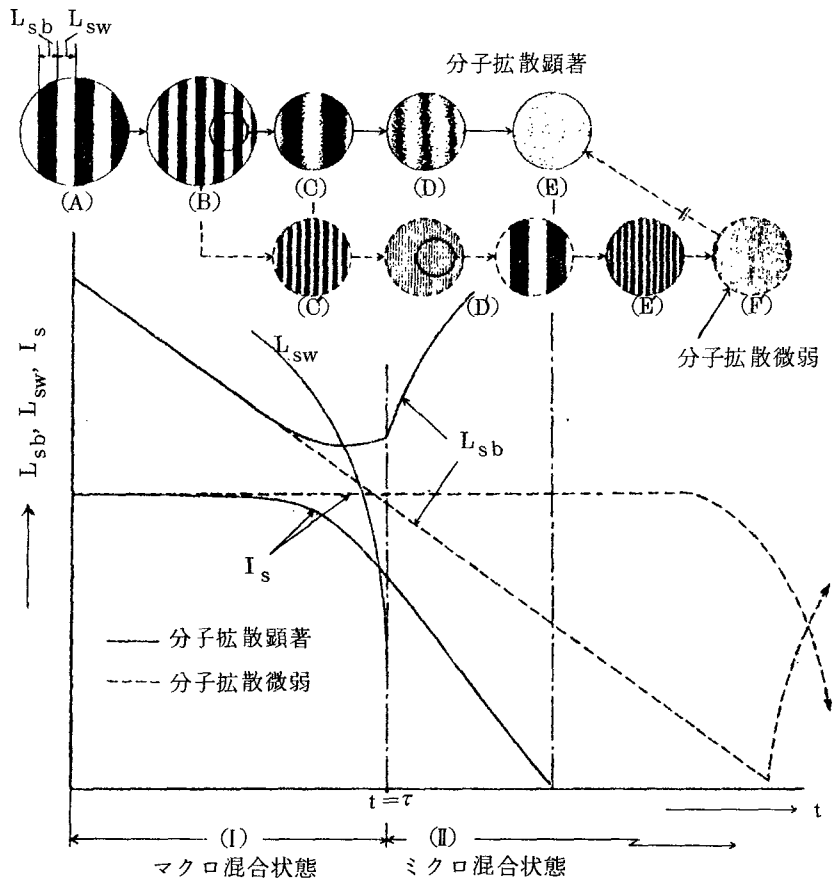
ついで、この混合実験で得られた知見に基づいて、攪拌槽内の均一化に最も有効な混合操作法について検討し、混合操作と槽内の均一化速度の関係を明らかにした。

### 第4章 高粘性ニュートン流体の攪拌混合

高粘性ニュートン流体の混合過程を光学的測定法により巨視的及至微視的空間に至るまで測定し、この結果に基づいて混合過程の解析式を導出した。

まず、Danckwertzの提案した混合度の定義、所謂、濃度のスケール $L_{sb}$ 、濃度の強さ $I_s$ の二量を用い、高粘性流体の混合過程を図示し、対流内部の剪断混合作用と溶質の分子拡散による均一化作用の両者の均一化への寄与を定量的に明らかにした。Fig. 1には、これらの結果を模式図として示した（同図参照）。

つぎに、Mohrの式を用い、同式の数値解の妥当性を測定結果により確かめて、微視的空間内における流体混合現象の解析法を明らかにした。さらに、巨視的空間内における混合現象は前章で示された攪拌装置の混合機構の解析法を用いて表わした。この場合、巨視的空間内の混合は、対流内部で移動変形して行く一本の溶質塊の混合状況と装置内の液の循環流れによって空間内に



$L_{sb}$  : 濃度のスケール                       $I_s$  : 濃度の強さ  
 $L_{sw}$  : 未混合部分のスケール               $t$  : 混合経過時間  
 混合系 (i) (A) → (B) → (C) → (D) → (E)    ; 例 高粘性高分子溶液-低分子溶質系  
 混合系 (ii) (A) → (B) → (C) → (D) → (E) → (F) → (E)

例 { 高粘性低分子溶液-低分子溶質系, 高粘性高分子溶液-高分子系  
      "                      -高分子系                      ,                      "                      -微粒子系

Fig. 1 高粘度液の混合過程 (両対数グラフ表示)

挿入配置される濃度むらの配列本数の両者を考慮することにより、解析的に表現されることを示した。

ついで、高粘度液における瞬間脱色反応におよぼす流体混合の影響を定量的に検討した。この場合、瞬間脱色反応の進行状況を微視的空間に至るまで光学的測定法により明らかにし、その測定結果に基づいて、擬一次反応速度が解析される式の導出を行った。この実験的研究によって、反応におよぼす流体混合の影響が解析的に示すことができた。

## 第5章 擬塑性流体の攪拌混合

擬塑性流体の攪拌混合の理論的考察と実験的検討を行ったことを述べ、この種の研究の定量的資料を与えた。

ここでは、液の非ニュートン性が混合におよぼす影響を定量的に検討するため、同心二重円筒装置を扱った。まず、同心二重円筒装置内の流動をエリス流動模型を用いて数値解し、剪断速度 $\dot{\gamma}$ 、濃度配列のパターン、混合時間 $T_M$ 、液単位容積あたりの散逸エネルギー $\epsilon_v$ を求め、液の流動と混合および動力消費と混合の相関をそれぞれ明らかにした。これらの結果は、ニュートン流体の場合と比較され、ニュートン流体との相違の程度が明らかに示された。この結果から、同心二重円筒装置における擬塑性流体の混合は、内筒（回転体）の近傍ではニュートン流体に比べて良好に進行するが、外筒（固定）壁側に至るほど混合の進行が不良となることが判った。この傾向は、液の非ニュートン性が顕著な溶液ほど著しいことが判った。

また、液単位容積あたりの散逸エネルギー $\epsilon_v$ と混合時間 $T_M$ の関係は、散逸エネルギー $\epsilon_v$ が比較的小さい値の範囲では近似的にニュートン流体の線形関係と一致するが、散逸エネルギーの値が大きな範囲になるとニュートン流体の場合からのずれが大きくなることが判った。

## 第6章 攪拌装置の混合性能評価法

攪拌装置の混合性能を精度よく評価するための解析方法と解析に必要な諸因子の物性値の測定方法について述べ、さらに、幾何学的相似な攪拌系におけるスケールアップについて記述した。

攪拌装置の混合性能を表現するにあたっては、まず槽内の巨視的空間内の混合現象の解析法の確立が先決と思われ、次の事が検討された。すなわち、槽内の巨視的混合現象は第3章で明らかにされた混合のパターンの解析法と第4章で明らかにされた微視的空間における混合の解析法の両者を用い、巨視的空間内で物質収支を解析することにより表わされることを示した。ついで、この解析法に必要な剪断速度 $\dot{\gamma}$ 、分子拡散係数 $D$ の測定法を示し、本解析法によってらせん帯翼攪拌装置における混合および瞬間脱色反応の進行状況を解析により求められることを示した。この場合、計算値は実測値によく一致することを確認した。

つぎに、幾何学的相似な条件で攪拌装置をスケールアップした場合を同心二重円筒装置について理論的に考察し、攪拌液の性状、装置の幾何学的形状因子および混合操作条件を考慮したスケールアップの解析式を導出した。この解析式については、らせん帯翼攪拌装置におけるスケールアップの実験により、その妥当性が確かめられた。

## 第七章 総 括

本研究の総括を述べた。

## 審査結果の要旨

攪拌槽内における高粘性流体の混合は高分子合成、発酵培養など各種化学プロセスにおける物質の均一化過程で重要な操作であるが、槽内の混合状態の複雑性、測定の困難性などの理由により、その流動機構は未だ十分に解明されていないのが現状である。本論文は攪拌槽内における高粘性流体の流動と混合特性を巨視的ないし微視的空間に至るまで、定量的に把握することを目的として行った一連の基礎的研究をまとめたもので、7章よりなっている。

第1章は緒論であり、本研究の意義とその目的を述べている。

第2章では、攪拌槽内における高粘性流体の均一化速度に溶質の分子拡散が寄与する割合を実験により検討している。まず、この種の研究が従来なされていないことを指摘し、電極セル法により各種攪拌液における低分子溶質の拡散係数を測定した。その結果、攪拌実験に使用する高粘性液を、KC1溶質の拡散が顕著な高粘性高分子溶液（例えばポリビニールアルコール水溶液）と、その拡散が微弱な高粘性低分子溶液（例えば水あめ液）の二種に区別している。ついで、この二種の液を用いそれぞれ攪拌実験を行い、両者の均一化速度の相違から、対流混合におよぼす分子拡散の影響を明らかにしている。

第3章では、各種の攪拌装置を用い、槽内の混合状態を写真撮影し、光学的方法により未混合部分のスケールの減少速度を求め、対流による混合作用を検討している。すなわち、装置の幾何学的形状および操作条件の諸因子を考慮して各種攪拌装置の均一化速度を図示し、それらを比較検討すると共に実験式を導出し、さらに、混合を促進、助長する有効な操作法を見出している。

第4章では、槽内の流動が理論的に解析できる同心二重円筒装置を用い、高粘性ニュートン流体の混合現象を光学的方法により、巨視的ないし微視的空間に至るまで測定し、その結果にもとづき混合過程を解析している。すなわち、実測結果をDanckwertsの混合度の表示法を用いて図示し、対流混合作用と溶質の分子拡散による均一化作用の両者の総合効果を明らかにし、ついで瞬間脱色反応におよぼす流体混合の影響を定量的に検討した。

第5章では、擬塑性流体の攪拌混合の理論的考察と実験的検討を行い、この種の研究に対する定量的資料を与えている。まず、同心二重円筒装置における擬塑性流体の流動、動力消費および混合の進行状況をエリス流動模型を用いて解析し、それらの相互関係を明らかにし、ついでニュートン流体の場合と比較して、液の非ニュートン性が均一化速度におよぼす影響を明確にしている。

第6章では、前章までに得られた知見をもとに、装置の混合性能評価法の確立とスケールアップに関する検討を行っている。まず、種々の攪拌装置における混合の進行状況を解析的に示して装置の混合性能を明らかにし、ついで装置を幾何学的相似の条件でスケールアップした場合の混

合状態を定量的に考察し，均一化の速度を求める式を導き，同時に実験によりその妥当性を確かめている。

第7章は総括である。

以上，要するに本論文は従来不明確であった攪拌槽内における高粘性流体の混合現象に関して一貫した研究を行い，流動ならびに混合特性におよぼす諸因子の影響を定量的に明らかにし，攪拌の分野に有用な知見を与えたもので，化学工学の発展に寄与するところ少なくない。

よって，本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。