

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 9 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05119

研究課題名(和文) ナノ・マイクロスケール空間の固液界面制御による圧力損失の低減効果

研究課題名(英文) Effects of surface chemistry on pressure drop by permeation of water through nano/micro porous structure

研究代表者

中村 一穂 (Nakamura, Kazuho)

横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：30323934

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、多孔質膜や濾過ケーキ中の微細な間隙(ナノ・マイクロ空間)を液体が透過する際に生じる圧力損失の界面科学的な新しい理解とその理解に基づく圧力損失低減法の開発を目的とした。多孔質ガラス膜の圧力損失に及ぼすKCL濃度の影響を詳細に検討した結果、純水に近い低濃度域では圧力損失が増加する傾向が観察され、これは細孔内に発達した電気二重層の重なりに伴い見かけ上液体の粘度が上昇する電気粘性効果により説明された。この電気粘性効果に及ぼす表面改質、界面活性剤吸着について詳細に調べたところ、無荷電、疎水性表面が電気粘性効果を低減させることが見出され、界面制御に基づく新しい圧力損失低減法が提案された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

生活排水の処理や工業用の純水製造など多くの分野で多孔質膜を用いた膜ろ過操作が用いられて、水環境の保全や先端科学産業を基礎から支えている。このような、分離プロセスではエネルギーの消費が大きなことが最大の課題であり、エネルギーは液体がろ過膜やケーキ層中の微細な空間を透過する際に生じる圧力損失として消費される。プロセスの省エネルギー化のために圧力損失の根本的な現象について電気粘性効果に基づく理解を行った。さらに電気粘性効果を利用した新しい圧力損失の低減方法を提案し、この方法を応用することにより、従来にはない非常に簡便な方法でろ過プロセスの省エネルギー化を達成することができる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study was to develop a new interfacial scientific understanding of pressure loss that occurs when a liquid permeates a fine gap (nano-microspace) in a porous membrane or filtration cake, and a pressure loss reduction method based on that understanding. As a result of examining in detail the effect of KCL concentration on the pressure drop of porous glass membrane, a tendency for pressure drop to increase in the low concentration range close to pure water was observed, which was explained by the electro viscosity effect that apparently increases the viscosity of the liquid with the overlap of the electric double layer developed in the pores. The surface modification and surfactant adsorption on this electro viscosity effect were examined and it was found that the no-charge and hydrophobic surfaces reduce the electro viscosity effect, and a new pressure drop reduction method based on interface control was proposed based on this finding.

研究分野：分離工学

キーワード：ろ過 膜分離 水処理 電気粘性効果 界面動電現象 電気二重層 多孔質膜 圧力損失

1. 研究開始当初の背景

固液分離プロセスは、環境保全やファインケミカルやバイオ分野などの高付加価値物質の生産技術を支える不可欠な分離操作として広く普及している。特に最近では、高い処理水質や分離膜の価格低下などより、膜濾過法の水環境分野への適応が急激に増加しているが、操作中の目詰まり(ファウリング)が問題点として指摘され、消費されるエネルギーが莫大となることから省エネルギー化が大きな技術的課題となっている。脱水工程に必要なエネルギーは、主に汚泥のケーキ層中に形成される微細な空間が水が透過する際の圧力損失として消費される。その圧力損失は本来分離に必要な理論値(分離媒体の圧力損失)と比較して極めて大きく、このことは、圧力損失改善によるプロセス省エネルギー化の余地が極めて大きいことを意味している。このような問題に対して従来の対策では、主に圧力損失の原因となるケーキ層を除くアプローチが取られているが、分離対象が多岐に渡るため対策方法の一般化は難しく、経験の蓄積が重要となる。このような現状を打破するため従来の圧力損失の原因に対する“量”的な対策に加えて、圧力損失の本質的な理解に基づく“質”的に圧力損失を低減するアプローチが必要となる。

圧力損失の本質は液体のせん断に基づく摩擦力である。ナノ・マイクロ空間に囲まれた水の物性(粘性)は、本来の物性や溶質の影響に加えて固体表面の荷電特性、疎水性水和層、液体の構造化など固液界面の影響を受け、また、それらの影響は空間が微細であるほど大きくなる。固液界面にはイオンの分布がバルク中と異なる電気二重層が形成されている。固液界面の影響が大きい微粒子分散(コロイド)系においては、その粘度が電気二重層の影響を受けて増加する電気粘性効果が知られている。電気二重層の長さは、Fig.1 に示すように、ちょうどUF膜やMF膜の細孔径と同じ程度であり、液体の透過にも影響を与えると予測される。

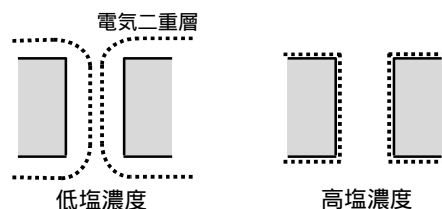


Fig.1 細孔内における電気二重層

2. 研究の目的

多孔質膜など微細な間隙(ナノ・マイクロ空間)を液体が透過することにより生じる圧力損失の界面科学的な新しい理解と、それに基づく圧力損失の新たな低減方法の開発を目的として、次の2点を検討した。

1. 微細空間のサイズと固液界面物性の新しい評価方法の開発と圧力損失の界面科学的理解

固液界面で形成される電気二重層に基づく界面動電現象を、多孔質膜が形成する微細空間内におけるせん断力場および間隙サイズの評価方法の開発を行った。

2. 固体表面の改質および溶質の開発に基づく“質”的な圧力損失低減効果の探索

ナノ・マイクロスケールの空間における固体表面の特性が圧力損失に与える影響を制御するため、固体表面の表面改質(荷電、親・疎水性)および界面活性剤の吸着現象を利用し、圧力損失と固体表面物性の関係を様々な表面状態を比較した。

3. 研究の方法

多孔質ガラス膜(細孔径 0.1~5.25 μm(SPG/MPG膜))の透過流束および電位に及ぼすKCl濃度依存性を測定した。測定に開発した装置をFig.2に示す。細孔表面はシラノール基に由来する親水性・負荷電の特性を示すため、シランカップリング剤(Octadecyltrichlorosilane:ODS)により疎水化し、その影響を検討した。また、界面活性剤(Sodium Dodecyl Sulfate:SDS, Dodecyl trimethyl ammonium Chloride:DTAC)の吸着の影響についても検討した。電気二重層の厚さが無視できる条件として、ガラスキャピラリー(内径140 μm)を用いて、同様の検討を行った。

圧力損失とゼータ電位を測定するための装置の開発を行った。

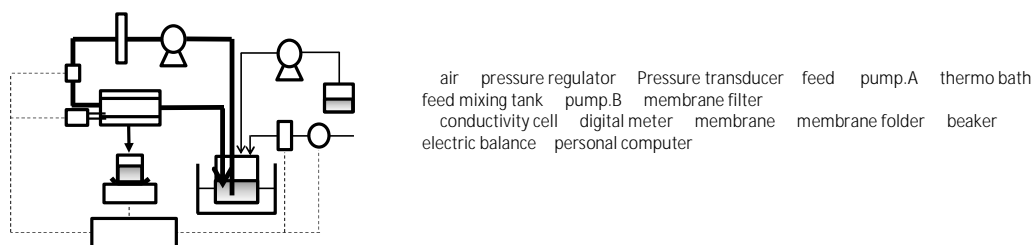


Fig.2 測定装置の概略図

4. 研究成果

多孔質膜(細孔径 0.1 μm)とガラスキャピラリーにおける透過流束に及ぼす KCl 濃度の影響を比較した結果、ガラスキャピラリーの透過流束は KCl 濃度の影響を受けず一定であったことから、膜の透過流束の変化を細孔内溶液の粘度 μ_{Pore} 変化として評価した。

Fig.3 に μ_{Pore} に及ぼす細孔径の影響を示す。 μ_{Pore} は、細孔径 0.1 μm , 0.28 μm の膜の低 KCl 濃度域で増加し、細孔径が小さいほうがより増加した。これは、より小さな細孔内では水溶液の移動が電気二重層の影響(電気粘性効果)を受けやすいことを反映したのと考えられる。

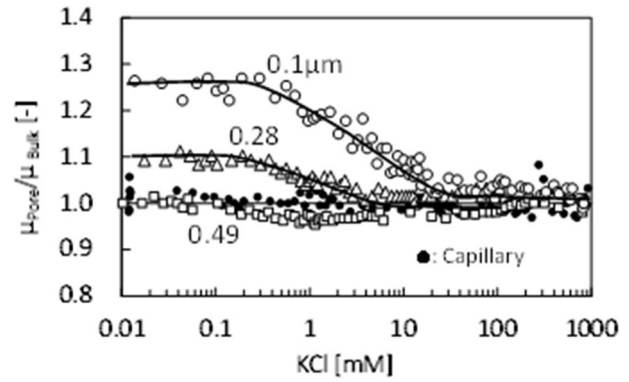


Fig.3 細孔内粘度に及ぼす細孔径の影響

Fig.3 に μ_{Pore} に及ぼす表面改質の影響を示す。純水に近い低濃度では両者に違いはなかったが、疎水膜の方がより低い KCl 濃度で電気粘性効果が低下する傾向があった。これは両者の荷電の起源や表面荷電密度の違いを反映したのと考えられ、未改質膜ではシリノール基由来の電荷により電気粘性効果が促進されるものと考えられる。

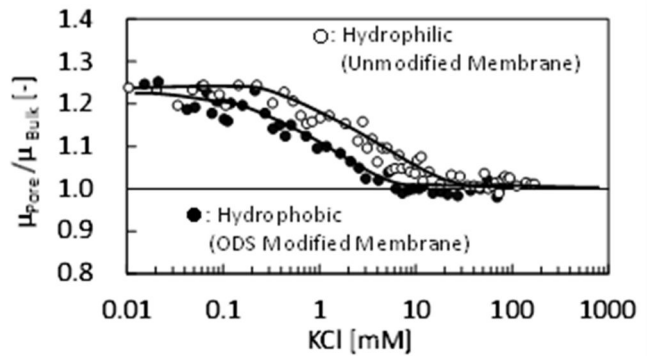


Fig.4 細孔内粘度に及ぼす表面改質の影響

Fig.4 に μ_{Pore} に及ぼす表面改質の影響を示す。純水に近い低濃度では両者に違いはなかったが、疎水膜の方がより低い KCl 濃度で電気粘性効果が低下する傾向があった。これは両者の荷電の起源や表面荷電密度の違いを反映したのと考えられ、未改質膜ではシリノール基由来の電荷により電気粘性効果が促進されるものと考えられる。

Fig.5 に μ_{Pore} に及ぼす界面活性剤の吸着の影響を示す。膜の表面改質と SDS と DTAC の組合せにおいて同様の測定を行ったところ、未改質膜(親水性表面)と陽イオン界面活性剤 DTAC の組合せにおいて、 μ_{Pore} が減少する濃度領域があることが分かった。この条件では、細孔のゼータ電位がほぼゼロに近い値を示すことから、細孔表面に DTAC が静電的相互作用で吸着してほぼ中和の無荷電の状態、細孔表面は界面活性剤の疎水基側で覆われている状態と考えられ、無荷電・疎水性表面は細孔内の電気粘性効果を低下させることが分かった。

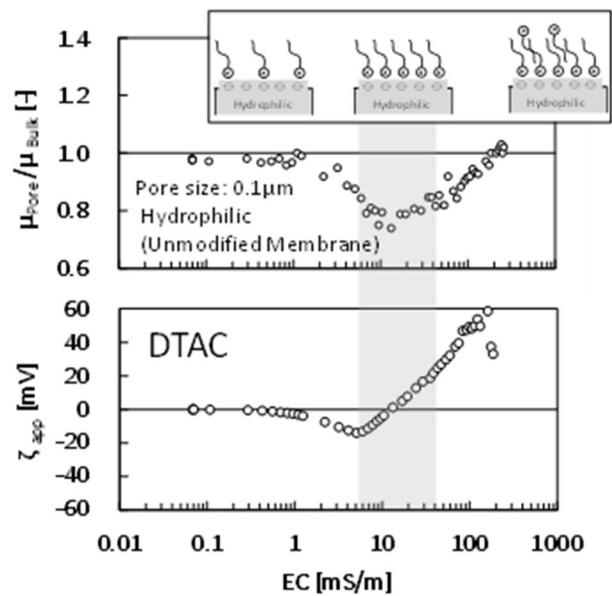


Fig.5 細孔内粘度に及ぼす DTAC 吸着の影響

これらの結果より、細孔表面物性(荷電特性、親・疎水性)を制御することにより多孔質膜の圧力損失が低減できることが分かった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中村一穂
2. 発表標題 電気粘性効果による精密ろ過膜のフラックス変化と表面改質の影響
3. 学会等名 化学工学会第86年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村一穂
2. 発表標題 多孔質膜における電気粘性効果と界面の親・疎水性の影響
3. 学会等名 高分子と水・分離に関する研究会 2021年度界面動電現象研究会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------