

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 30日現在

機関番号：13102

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560206

研究課題名（和文） 膨潤性微粒子層における浸透圧を含む乾燥特性とその制御

研究課題名（英文） Drying and dehydration in swelling materials

研究代表者

青木 和夫（AOKI KAZUO）

長岡技術科学大学・工学部・教授

研究者番号：60115095

研究成果の概要（和文）：

土壌や高分子ゲルに代表される膨潤性粒子層を乾燥する場合、含まれる水分が多いため前処理として脱水処理が重要となる。膨潤性粒子層では、浸透圧に依存する平衡膨潤圧が高いため加圧や遠心分離による圧力脱水では限界がある。ここでは、電気浸透脱水と凍結分離脱水の二つの新しい脱水方法を提案するとともに、それぞれの脱水方法に対する基礎的取り扱いおよび有効性を検討した。

研究成果の概要（英文）：

Swelling is a phenomenon which fine packed beds such as polymer and clay absorb liquid by osmotic pressure and increase the volume. Drying and dehydration in swelling materials are very important problems in wide fields such as agriculture, food science and bioengineering.

In drying of swelling materials, dehydration process is needed before drying process. We presented here two methods for dehydration processing of swelling materials. One is the method by electro-osmotic flow caused by applied electric field. The other is the method of freezing separating moisture from swelling materials. It was found that both methods were investigated experimentally and were effective for dehydration of swelling particles.

交付決定額

（金額単位：円）

|        | 直接経費      | 間接経費      | 合計        |
|--------|-----------|-----------|-----------|
| 2009年度 | 1,200,000 | 360,000   | 1,560,000 |
| 2010年度 | 1,500,000 | 450,000   | 1,950,000 |
| 2011年度 | 900,000   | 270,000   | 1,170,000 |
| 年度     |           |           |           |
| 年度     |           |           |           |
| 総計     | 3,600,000 | 1,080,000 | 4,680,000 |

研究分野：工学部

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：膨潤、浸透圧、脱水、乾燥、電気浸透、凍結、電気二重層

## 1. 研究開始当初の背景

乾燥に関する研究は多く取り扱われているが、水分移動の駆動力として毛管力を考慮したものがほとんどである。しかし、粒子が微細になると、粒子表面の電荷と対応して流体側に生じる電気二重層に基づく浸透圧が水分移動の駆動力として重要になる。浸透圧

による水分移動が特に顕著となる膨潤（swelling）現象を含む微粒子内の乾燥特性は、粒子構造の大きな変化を含む取り扱いが必要であり、土壌、セラミックス、食物・生体、高分子ゲルなどに関連して農業、土木、食品・生体などの広範囲な分野で重要な課題となっている。

## 2. 研究の目的

本研究は、粘土性土壌やセラミックスの乾燥および食物の乾燥を対象として、水分による膨潤をともなう微粒子層の脱水・乾燥特性を浸透圧による水分移動を踏まえて検討する。膨潤性物体を直接に乾燥する場合、物体の収縮が避けられず、物体形状の変化やひび割れが生じること、および乾燥に費やすエネルギーと時間が多大となることが問題となる。このため、乾燥過程の前処理として膨潤状態からの脱水が重要となる。ここでは、膨潤状態を緩和した後に乾燥することを前提として、膨潤状態からの脱水現象に重点を置いた研究を行う。

## 3. 研究の方法

脱水方法として、加圧や遠心分離による圧力脱水が一般的であるが、膨潤粒子層では水分が粒子に強く拘束されており、平衡膨潤圧が高いため、圧力による脱水では限界がある。ここでは、圧力に拠らない脱水方法として、電気浸透脱水および凍結脱水を検討する。以下に、それぞれに対応する研究方法を示す。

### (1) 電気浸透による脱水

膨潤性粒子層では、陽イオン交換容量が多く、電場付与による電気浸透の効果が顕著である。ここでは、膨潤性粒子の脱水における電気浸透の効果を検討するとともに、電場付与と加圧を組み合わせ、電気浸透をトリガーとした加圧脱水の可能性を検討する。

直流電場付与による膨潤粒子層からの電気浸透実験の概略を図1に示す。実験装置は、試料粒子を充填する試料容器と二つの水槽を連結させた構造となっている。試料容器は内径 60mm のアクリル製で、内部に膨潤性粒子が充填されており、粒子層の両端には白金メッシュ電極と粒子固定用のステンレス網が設置され、排水側にさらに細かい網を設置し粒子のはみ出しを防止した。実験に用いた試料粒子はアクリル酸塩系の超吸水性樹脂(高分子ゲル)で、試料液体には蒸留水を用い

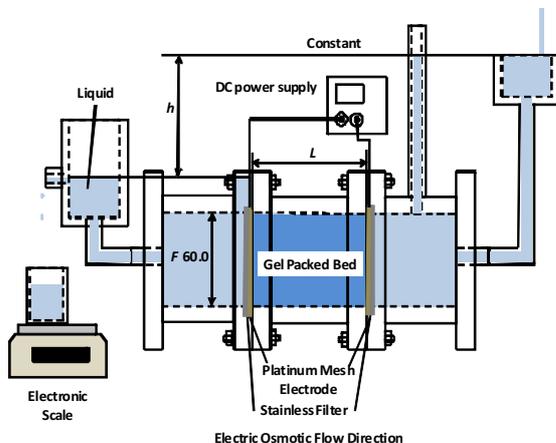


図1 電気浸透実験装置

た。電気浸透実験では、直流電圧付加と水圧付加の複合効果について検討する。水圧を付加した電気浸透の実験条件は、ゲルの初期体積含水比  $W (= M_w \rho_s / M_s \rho_w)$  を 100, 160 とし、印加電圧を 5V, 10V とし、付加水圧を 0~20kPa とした。

### (2) 凍結分離による脱水

凍結脱水は、膨潤性粒子を周囲から冷却し、凍結時に水分と粒子を分離するものである。これは、膨潤状態で周囲に強く拘束されている水分も容易に凍結分離することを利用するものであるが、完全に分離脱水するには凍結速度の制御が重要となる。

図2に凍結分離の脱水実験装置を示す。凍結実験部を詳細図として示す。冷却温度の制御は試料容器 (φ30mm×t10mm×H160mm) を挟んで上下4個のペルチェ素子で行い、その素子は低温恒温槽より不凍液を循環して冷却されている。装置全体をモーターにより一定速度で移動させることにより凍結速度  $V_f$  をほぼ一定に制御した。試料として、前述の高分子ゲルおよび膨潤性粘土であるベントナイト(土粒子の密度  $\rho_f = 2.6g/cm^3$ ) を用いた。試料高さを調整することで初期体積固相率  $\phi_{s0}$  を変化させた。

予備凍結層として約 20mm 試料下部を凍結したのち一定速度で凍結を行った。凍結終了後、凍結層を 5mm 間隔で分割・乾燥させ粒子および水分量を測定し、凍結層の固相率の変化を計算する。

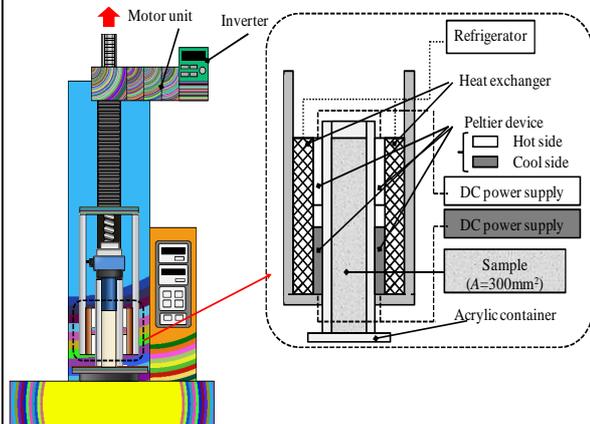


図2 凍結分離脱水の実験装置

## 4. 研究成果

### (1) 電気浸透による脱水

膨潤性粒子に対する電気浸透脱水の基礎として、電気浸透流に水圧を付加する場合の有効性を検討した。図3にゲルの体積含水比  $W$  および印加電圧をパラメータとして、水圧に対する浸透速度の変化を示す。はじめに、水圧0の条件で、印加電圧および体積含水比  $W$  の違いに対する浸透速度の変化をみると、印加電圧が高く、体積含水比が大きいほど水分浸透速度は速くなっている。これは、前者

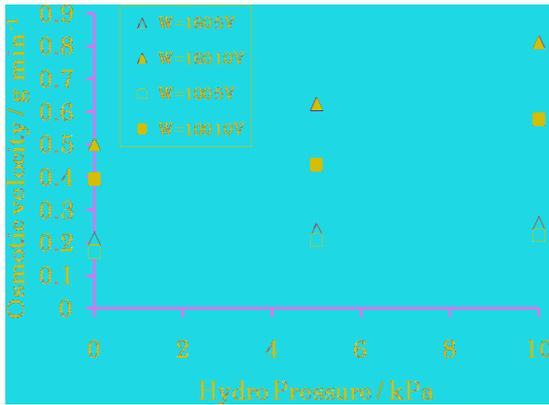


図3 電気浸透速度に及ぼす水圧の影響

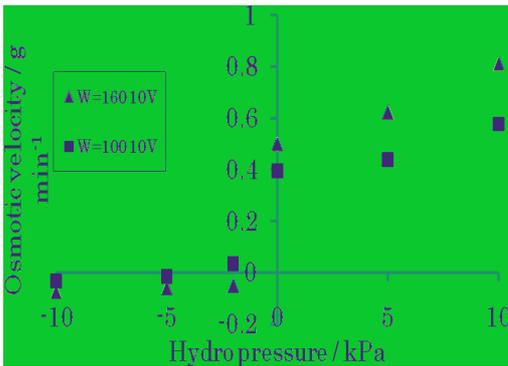


図4 電気浸透速度に及ぼす正負水圧の影響

は電場強度の増加によるもので、後者は流体粘度の低下によるものである。次に、水圧の影響をみると、水圧の増加とともに水分浸透速度が速くなるのがわかる。特に、高い体積含水比の条件で付加水圧の効果が顕著となっている。このことから、圧力による脱水が不可能な膨潤粒子層においても、電気浸透をトリガーとした圧力脱水の可能性が指摘される。

電気浸透と水圧を付加した場合の水分浸透をより明らかにするために、図4に水圧を電場方向と反対に付加した場合を含む水分浸透速度と水圧の関係を示す。水圧を反対方向に付加した場合、水分浸透速度は急激に低下し、5kPaでは電気浸透と逆方向の水分浸透が確認された。このことから、圧力脱水が困難な膨潤粒子層でも、電場付与による膨潤圧の低下をトリガーとした水圧による反対方向への流動も可能であることが示される。

次に、高分子ゲルの電気浸透による脱水過程を検討する。図5はゲル層高さ75mm一定で、初期体積含水比 $W = 50, 100$ 、印加電圧5V, 10Vのそれぞれの条件に対する脱水速度の時間変化を示す。脱水速度は、電圧印加とともに徐々増加し、ピークを経てやがて低下する。この脱水速度の時間変化は、電気浸透にともなう下流部での体積含水比の増加とそれともなう脱水により脱水速度が

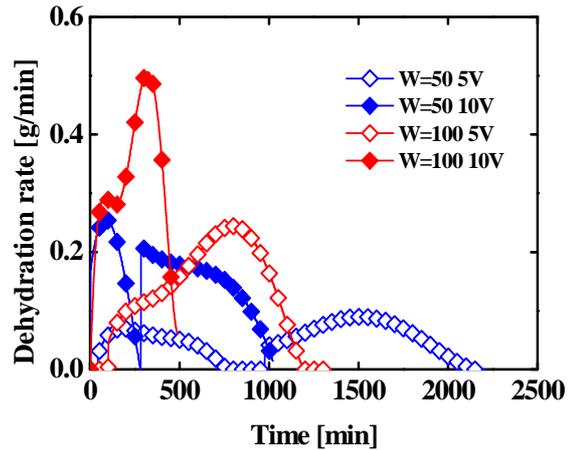


図5 脱水速度の時間変化

増加するが、やがて層内全体の体積含水比が低下することにより一定電圧下では脱水速度が低下するものである。当然の如く、印加電圧が大きな条件ほど脱水速度は速く、脱水時間は短くなる。また、初期体積含水比 $W$ による違いとして、含水量が多い $W = 100$ に比べて、含水量が少ない $W = 50$ で脱水時間が長くなる。これは、含水量が少ないほど流体の粘度が大きくなることに加えて、 $W = 50$ の脱水過程で一時的に脱水が不可能となる現象が起こるためである。脱水速度は一時的にほぼ0となった後、時間を経て再び脱水が開始する。この要因として、脱水過程における層内の含水分布の非一様性が挙げられる。すなわち、低初期体積含水比では、電気浸透による層内水分分布の差が大きくなり、表面層の含水比が低下し電気抵抗が大きくなるため、一定電圧下で電流が低下し脱水が生じなくなるものと考えられる。従って、脱水の再開は水分浸透による含水比の局所的な増加を経て生じるものと理解される。

## (2)凍結分離による脱水

周囲の流体に強く拘束された膨潤性粒子でも凍結時に水分と粒子を分離することは比較的容易である。

ゲルが凍結するときゲル粒子が凍結層に捕捉される場合と分離される場合がある。ゲルがすべて分離される場合が完全脱水に相当する。図6に体積含水比 $W$ に対するゲルの捕捉・分離状態を示す。凍結速度が速くなるとともにゲルの完全分離状態から捕捉状態になる。ゲルが完全分離状態となる最大凍結速度を臨界凍結速度と定義すると、臨界凍結速度は低含水比域ほど小さくなる。これは、膨潤度が低いほど水分は粒子に強く拘束されているため、粒子が捕捉されやすくなるものと考えられる。図7の写真は粒子が捕捉された状態と完全に分離された状態の凍結界面近傍の様子である。

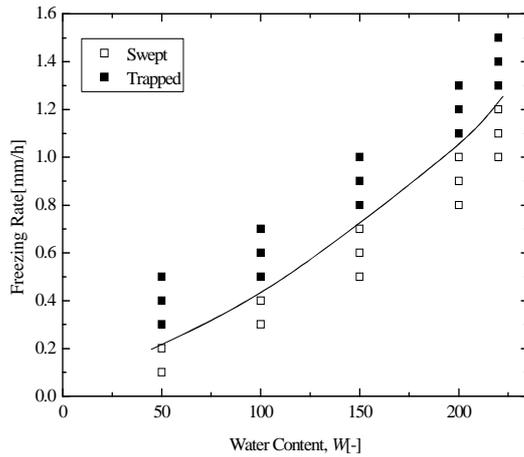


図6 臨界凍結速度と体積含水比の関係

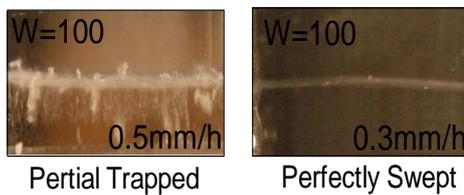


図7 捕捉ゲルと完全分離ゲルの状態

次に、ベントナイトを用いた場合の凍結分離結果について示す。図8は凍結速度および初期固相率が異なる条件で、凍結状態の違いを示す写真の一例である。初期固相率が低く ( $\phi_{S0} = 0.114$ )、低凍結速度 ( $V_f = 0.1\text{mm/h}$ ) 条件では、ベントナイトは凍結層から完全に分離され氷層が形成されており、凍結脱水できることになる。しかし、凍結速度の増加とともに凍結層内にベントナイトの一部が捕捉される粒子の部分捕捉状態となる。また、初期固相率が高い条件 ( $\phi_{S0} = 0.243$ ) ほど、ベントナイト粒子は凍結層に捕捉されやすくなる。

膨潤状態からの脱水では粒子の捕捉・分離現象が重要となるため、分離現象をもう少し詳細に検討する。水溶液の凍結における溶質の分離で定義されると同様に、凍結界面での未凍結層の固相率  $\phi_{S,U}$  に対する凍結層の固相率  $\phi_{S,S}$  の比をここでも分配係数  $k$  と定義すると、次のように表される。

$$\text{真の分配係数 } k = \frac{\phi_{S,S}}{\phi_{S,U}}$$

ここで、完全に粒子が凍結層から分離され氷層を形成する場合  $k=0$  であり、すべての粒子が捕捉される完全捕捉の場合  $k=1$  となる。しかし、凍結速度が一定でも粒子の分離が生じる場合、界面における未凍結層の固相率は時々刻々と変化するため、瞬時の界面での値を得ることは非常に困難である。ここでは、便宜的に初期固相率を基準としたみかけの

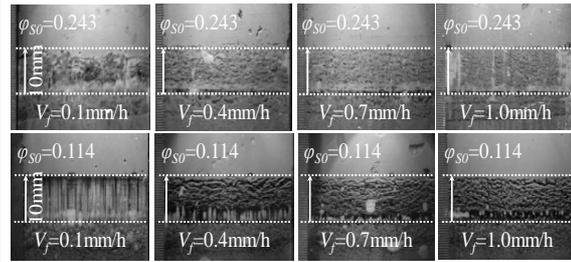


図8 凍結によるベントナイトの捕捉・分離

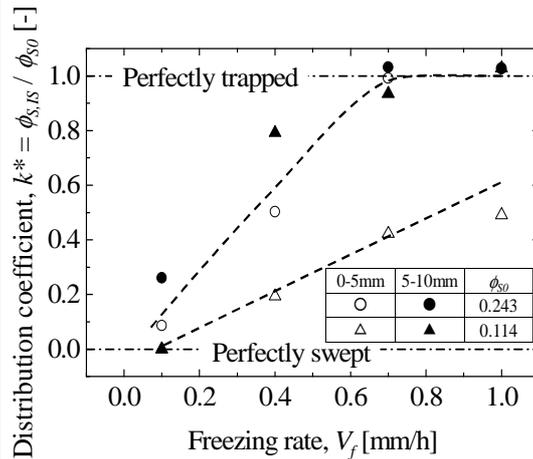


図9 凍結速度とみかけの分配係数の関係

凍結分配係数  $k^*$  を次式のように定義する。

$$\text{みかけの分配係数 } k^* = \frac{\phi_{S,S}}{\phi_{S0}}$$

図9にみかけの分配係数と凍結速度の関係を示す。凍結初期 (○, △) では、界面固相率が初期固相率に近いものと考え、みかけの分配係数は真の分配係数に近い値と考えることができる。分配係数は凍結速度が速くなるとともに大きくなり、やがて完全に捕捉される  $k=1$  になる。初期固相率が低い場合、凍結速度に対する分配係数の変化は緩やかに上昇し、完全捕捉となる凍結速度は速くなる。凍結後期 (●, ▲) では、凍結面からの粒子の掃き出しにより、みかけの分配係数はいずれも大きな値となる。

膨潤性粒子層を凍結分離による脱水を行う場合、完全分離となる  $k=0$  となる凍結速度で制御することが必要となる。ゲルのように膨潤度が大きい試料では、有効な凍結速度を速くすることができるが、ベントナイトのように膨潤度が比較的小さい試料では完全分離となる凍結速度が遅く、さらに有効な凍結速度の条件を大きくする方法が必要となる。

以上の結果をまとめると、膨潤性物体の乾燥において、膨潤状態をできるだけ緩和した状態から乾燥することを前提として、加圧に抛らない2つの脱水方法を提案した。電気浸

透脱水では、電気浸透による脱水の効果が示されるとともに、電場付与による周囲流体の拘束状態の緩和をトリガーとした加圧付加の有効性が示され、電場を利用した脱水の可能性が拡大した。また、凍結分離による脱水の有効性が確認されたが、完全分離となる凍結速度の高速化が大きな課題として残されている。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計6件)

- ① Kazuo Aoki, Masatoshi Akahori, Yoshiki Imai, Frost Heave for Swelling Soil, 22<sup>nd</sup> International Symposium on Transport Phenomena, November 10 2011, Delft
- ② 高橋慎也、赤堀匡俊、青木和夫、膨潤性土壌の凍上現象に及ぼす NaCl 水溶液の影響象、日本機械学会熱工学コンファレンス 2011、2011 年 10 月 29 日、浜松市
- ③ 青木和夫、赤堀匡俊、今井良樹、高橋慎也、膨潤性と非膨潤性粒子からなる混合土壌における凍上現象、第 48 回日本伝熱シンポジウム、2011 年 6 月 1 日、岡山市
- ④ 今井良樹、青木和夫、赤堀匡俊、膨潤性土壌における凍上現象、日本機械学会熱工学コンファレンス 2010、2010 年 10 月 31 日、長岡市
- ⑤ 青木和夫、赤堀匡俊、中村賢二郎、今井良樹、膨潤をともなう高分子ゲルを用いた凍上機構の解明、第 47 回日本伝熱シンポジウム、2010 年 5 月 28 日、札幌市
- ⑥ 青木和夫、赤堀匡俊、中村賢二郎、今井良樹、膨潤をともなう多孔質の水分移動、日本機械学会熱工学コンファレンス 2009、2009 年 11 月 8 日、山口市

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

青木和夫 (AOKI KAZUO)

長岡技術科学大学 工学部 教授

研究者番号：60115095