

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 2 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24580348

研究課題名(和文) ネットワーク形成が粘土フロック懸濁液の界面沈降に及ぼす効果

研究課題名(英文) Effect of network formation on interface settling property of clay floc suspension

研究代表者

中石 克也 (nakaishi, katsuya)

茨城大学・農学部・教授

研究者番号：40180236

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)：沈降過程ではフロック構造が変化しないと予測されてきた(Michaels & Bolger)。しかしながら、本研究によってフロック構造が変わらないのは最密充填構造までであることがわかった。又、フロック構造が変化したのは、フロック間引力に基づく構造のみであることがわかった。最終沈降体積から推定されたフロック間引力に基づく構造は、最疎充填構造、最密充填構造、完全充填構造(フロック変形で間隙がない状態)等であった。ネットワーク構造は壊れやすく、最終沈降状態では捉えることができなかった。さらに、この構造から粒子の接触による有効応力が推定された。

研究成果の概要(英文)：The structure of floc does not vary during settling process. This prediction by Michaels and Bolger was proved to be valid for only below the concentration of 0.74 volume fraction (maximum packing). This result means that the rigid sphere model can be applied for only below the volume fraction of 0.74. Therefore, the structure of floc seems to be strong in the settling process but the weak structures were found in the packing process. Those structures were network structure, minimum packing structure and maximum packing structure. These structures were rather stable for weak stress and were found to exist by the measurement of ultimate sediment volume.

研究分野：土壌コロイド工学

キーワード：フロック構造 粘土懸濁液 最疎充填 最密充填 完全充填 有効応力

1. 研究開始当初の背景

フロック構造について Michaels & Bolger は「沈降過程ではフロック構造が変わらない」と予測している。しかし、流体力でフロック構造が変形破壊する事例が数多く報告されている。この問題は、沈降解析にとって最も基本的で重要な矛盾である。それは、沈降や沈下に剛体球モデルが使えなくなるためである。これは、沈降から沈下への移行で最疎充填仮定が使えないことを意味する。一方、剛体球モデルでは沈下が最密充填構造（濃度）を越すことができない。これらはきちんとした測定で明らかにすべきである。

フロックは1次粒子の引力で構造を保つ。この引力はフロック間の引力をも発生させる。そのため、フロックが結合した構造が存在する。ネットワーク構造も最疎充填構造も最密充填構造もそのようなものであり、安定性があると予測される。即ち、小さな応力では構造が破壊されない。それが最終沈降体積の原因である。

この考えに基づいて新たな沈下測定法を考案し実態を解明する。

2. 研究の目的

フロックの構造は変化しないとされてきた。本研究ではそれが最密充填濃度(0.74vol%)まで正しいことを実証する。しかし、沈下を進めそれ以上の濃度にするためにはフロックの変形が必須となる。フロック変形がその濃度で生じるか、さらに、次にどのような構造（濃度）に落ち着くかを示す。

フロックは一次粒子間の引力によりその構造を保つ。さらに、その引力によりフロック間にも引力が発生する。フロック間引力による構造がネットワーク構造、最疎充填構造、最密充填構造等であることを示す。

フロック間引力に基づく弱い構造は、弱い応力によって破壊する。自重による応力と振動応力とによる構造破壊を最終沈降体積から明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 供試試料

自然界の粘土鉱物の中で最も代表的なカオリナイトを用いる。振動効果だけを見るため、試料はガラス管に密封して完全な同一状態をつくる。又、界面沈降の効果を知るため、標準試料として濃度の薄い(体積濃度:0.20%)自由沈降を示す試料をつくる。

(2) 横転振動攪拌

横転により自重を1/10以下に弱くして構造破壊を行う。又、振動数を低くして弱い振動応力によっても構造破壊を行う。一方、共振浮遊は横転して波動を見ながら振動数を高くする。

(3) 直立静置沈降

横転して振動攪拌したものを直立にして沈降測定を行う。その際、自由沈降では沈積量が少ないので沈積濃度が保存されるような工夫をする。又、測定は1/100mm精度の読み取り顕微鏡を用いて行う。



写真1 横転振動攪拌装置

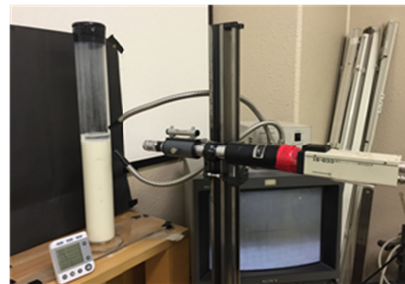


写真2 直立静置沈降測定装置

4. 研究成果

(1) フロック懸濁液の二重構造

フロック構造とフロック間構造

フロックの構造は一次粒子間の引力によって保たれている。この引力はフロック間の引力の原因ともなりフロック間に構造を形成している。この構造は沈降過程から沈下過程に移行したときに発生した。さらに沈下が進行して濃度が高まると新たに強いフロック間構造が発生した。一方、フロック構造は最密充填濃度で球形から変形した。剛体球モデルが使えるのはここまでである。

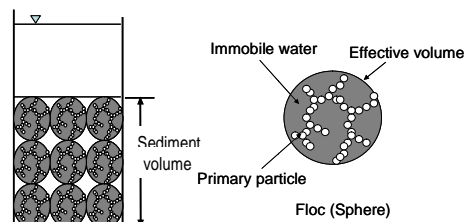


図1 フロック構造とフロック間構造

図1 フロック構造とフロック間構造

水とフロックの運動に及ぼす構造効果

沈降過程ではフロック構造は一定である。そのため、フロックと水との相対速度のみが重要となる。特に、水とフロックと一緒に動く完全混合状態ではフロックは単なるトレーサーとなった(フロック構造に依存しない)。

一方、沈下過程ではフロック間構造が固定されて、透水のみが生じる。

フロック運動に及ぼす振動効果

沈降過程では振動数を増すと浮遊効果が大きくなり沈降は遅くなった。一方、沈下過程では振動数を増すと沈下は速くなった。

(2) 振動と沈降（浮遊）

沈降からみた振動流動の変化（転移）

沈降沈下曲線を図2に示す。振動数92rpm以上で沈降が最小となる曲線上にすべてがのった。この同一曲線は攪拌時には完全混合である。完全浮遊領域と名づける。

又、沈降速度が振動数でどのように変化するかを図3に示す。振動数領域によって横転流動が変わる流動転移が顕著である。

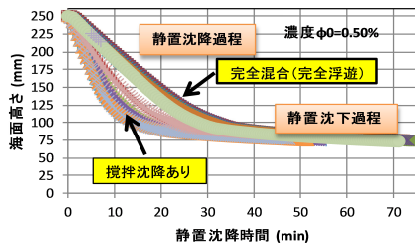


図2 沈降沈下曲線と攪拌振動数

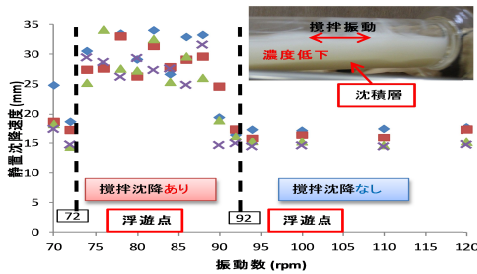


図3 沈降速度と振動数

完全浮遊

振動数が34rpm,70rpmと大きく異なる完全浮遊状態の沈降沈下曲線を図4に示す。曲線が完全に一致するのが示される。フロック構造が同じであるといえる。

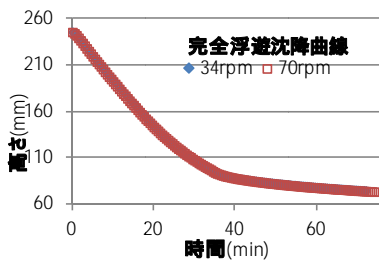


図4 完全浮遊状態の沈降沈下曲線（34rpm,70rpm）

共振現象

共振による大きな波動が完全浮遊領域を創りだした。この現象を沈降速度と振動数との関係として図5に示す。ただし、水深は一定とし、振動方向を傾けた状態と管長を変えた状態とする。

なお、共振点は浅い波の近似を円形管に適用

し算定した。共振点測定は振動方向を管軸から80°傾けて行った。攪拌水深を変化させた時は、水深を浅くすることにより共振点が求まった。攪拌水深を変えた時の沈降速度と相対振動数（共振点を一致）との関係を図6に示す。

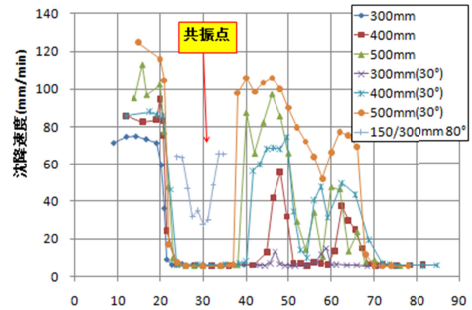


図5 沈降速度と振動数（管長効果、振動方向効果）

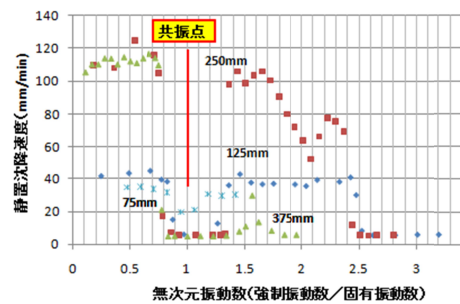


図6 沈降速度と相対振動数（攪拌水深効果）

波動からみた振動流動転移

振動数は波動を大きく変化させる。写真3には基本振動数（共振点）以下の典型的な波動変化を示すが、壁面との衝突により波動が発生し、それが共振により段波に変化する様子がみえる。

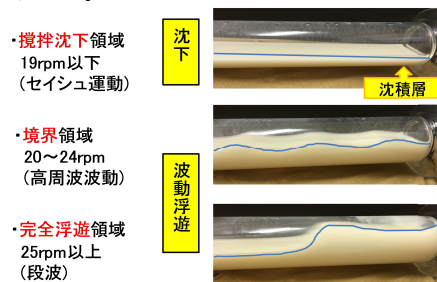


写真3 振動数と波動

(3) 振動と沈下

自由沈降からの沈下現象

界面沈降においては沈積界面にネットワーク構造ができる。振動攪拌ではこれを避けることができるが、攪拌後の静置沈降で界面ネットワーク構造ができる可能性が高い。従って、自由沈降での測定を加えた。しかし、自由沈降では界面沈降が見えないことから沈積面上昇を測定し、沈積沈下曲線をつくり、図7にみられるようなピークから沈下量を測定した。沈積部の直線性も良く再現性もあるため、この方法を標準とした。図には30分横

転静置の沈積沈下曲線も併せてあるが、沈下もはっきりみえる。

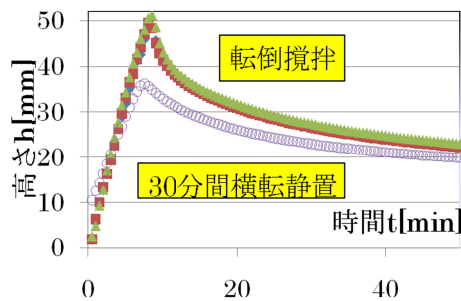


図7 自由沈降の沈積沈下曲線

沈下と沈降の相互作用

振動数と沈下の関係を攪拌時間毎に調べた。結果を図8に示す。これより、短時間沈下では沈下量が振動数によらないことがわかる。即ち、沈降速度は振動数によらない。これが、完全沈降領域であり、静置沈降速度を示す領域である。又、2~3分後や最終沈下状態から沈降領域が4領域に分かれることが示された。

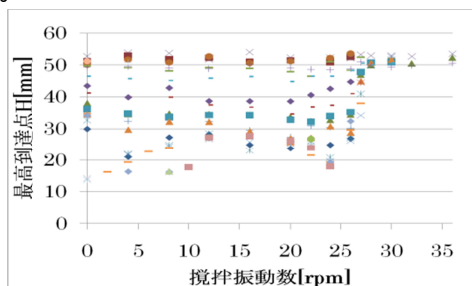


図8 攪拌時間毎の沈下と振動数

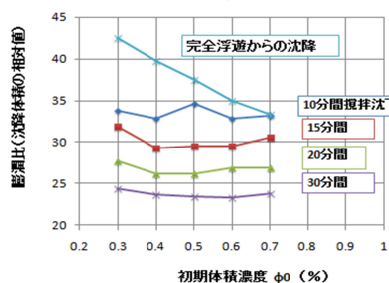


図9 沈下に及ぼす濃度の効果

沈下における濃度効果

振動攪拌による沈下では、フロックの大きさを表す膨潤比は濃度によらず一定であった(図9)。(時間とともに下がるのは充填が沈下で進むからである。)これはフロック構造が初期濃度を変えても変化しないことを示している。一方、完全浮遊の界面沈降では沈積界面にネットワーク構造が現れ濃度によって沈降体積が変化した。しかし、後の沈下からみてフロック構造は変化していない。

転倒攪拌による復元

横転振動攪拌を終えて横転から直立に移行するとき、沈積層界面を通しての水の移動は無視できた。一方、転倒攪拌1~2回で完全浮遊状態に復元した。すべての測定で復元は完

全であった。この意味は、現在用いている応力でフロック破壊は無いことを示唆している。むしろフロックの変形であれば復元しやすいと考える。

フロック構造の変形

フロック沈積層では変形により沈下現象をおこす。それは、最密充填を越す事例が一般的であることがわかったからである。さらに、フロックの体積を変えずに充填する極限は間隙のなくなる完全充填であり、いくつかの振動応力でこの状態に収束したためである。一方、フロックは体積を変えずに変形しやすい点、さらに、変形してつぶれたときに生ずるフロック間の接触面積増加で粘性の大きな増加がみられたからである。

(4) フロック間引力に基づく安定した構造

最疎充填構造と最密充填構造

最疎充填構造は沈降過程から沈下過程へ移行する際に必ず発生する典型的なフロック間構造である。この構造はかなり安定している。そのため、自重(応力)が小さくて破壊が進まない場合もあるが、破壊応力を越す自重で沈下させた場合について図10に示す。最終状態として最密充填構造に落ち着いたが、大きな自重では最密充填構造をも破壊する。すなわち、フロックが球形から変形し、濃度の高いフロック間構造へ移行する。

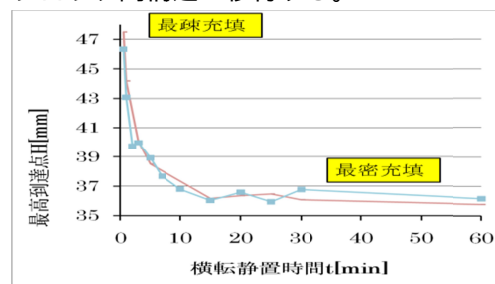


図10 最疎充填から最密充填構造への沈下

最終沈降体積

最終沈降体積の存在は沈下のメカニズムに直結する。一定応力の沈下では構造破壊が次々と進み、壊せない構造まで到達したらそこで沈下は終了する。これが沈下限界であり、最終沈降体積である。又、構造(濃度)は離散的であり、濃度増加とともに強く壊れにくい構造となる。

振動応力

最終沈降体積から推定した振動応力は複雑であった。特に、振動数の低いところで沈下が大きくなるのは異常に見える。

(5) まとめ

従来の転倒攪拌から横転した振動攪拌に転換する必要が生じた。フロックをトレーサーとして攪拌後の沈降速度を調べた結果、一定の振動数以上で完全混合を示すことが明らかとなった。一方、低い一定の振動数以下では静置した時の沈降速度となった。

静置沈降速度を示す領域で沈下測定を行った結果、最疎充填構造と最密充填構造の存在が示せた。それはフロック構造が変わらないことをも示す。

フロック間引力に基づく構造の存在を明らかにした。構造は濃度に対応し、ネットワーク構造、最疎充填構造、最密充填構造へと沈下の進みに従って転移した。さらに、フロック変形が生じたため最密充填構造を超えて沈下した。

(6) 国内外における位置づけとインパクト 攪拌と沈降の結合

攪拌が異なると沈降は異なる。完全混合する時だけ攪拌効果は消える。従来の転倒攪拌では完全混合が成立したが、機械攪拌では攪拌中に沈降が生じる場合がある。この実態を振動攪拌で明らかにした。すなわち、一定の振動数以上で確実に完全混合が生じる現象についてフロックをトレーサーとした沈降試験で明らかにした。これは流体とフロックが一緒に動く領域では確固とした現象であり利用価値が高い。

攪拌と沈下の結合

振動数の低い攪拌では、常に静置沈降速度に等しくなる。そのため、振動数が異なる沈下からその振動数依存性が明らかとなる。汚泥等の沈下に際して最適な振動数が使えることになる。

充填構造の存在とその利用

横転により自重を小さくし、あるいは振動数を変えて振動応力を小さくすることにより、安定した充填構造の存在を明らかにできた。すなわち、応力が小さすぎて構造を破壊できない現象である。逆に、フロック間引力に基づく充填構造は弱すぎて、一般的にはすぐ破壊されるため見えにくい。

(7) 今後の展望

振動攪拌で振動数による沈降の違いを別の沈降操作で測定可能とした。この新たに開発した手法は沈下のメカニズムを知る第一歩であった。さらに、この手法を用いて汚泥等の沈下技術を改良する必要がある。

振動攪拌による振動沈下の進行が測定可能となった。特異的な振動沈下を理論化し普遍化する必要がある。

最終沈降体積から安定した構造の存在が見出された。これらはフロック間引力に基づく構造で、最疎充填構造や最密充填構造が見られた。これらの構造についてその安定性や破壊応力を調べる必要がある。特に弱いネットワーク構造の特性は必須となる。

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)

[雑誌論文](計3件)

Tsuguki Kinoshita、Katsuya Nakaishi and Yoshihiro Kuroda『Determination of size and structure of kaolinite floc using interface settling velocity』、(submitted to Clays and Clay Minerals)、未発行、査読有

中石克也、大井節男『鉛直流路形成が濃厚懸濁液の界面沈降速度に及ぼす影響』、土壌の物理性 127、11-18、2014、査読有

Katsuya Nakaishi、Setsuo Ooi and Motoyoshi Kobayashi『Effects of container diameter and volume fraction on the sedimentation process of flocculated suspensions』、Journal of the Society of Rheology, Japan、40、205-208、2012、査読有

[学会発表](計4件)

大井節男、中石克也、杉本麻美、『振動攪拌で発生する波動による粘土フロックの浮遊』、化学工学会第80回年会、2015.3.、東京

大井節男、中石克也、篠崎晴菜、岡野祐亮、『沈降過程における粘土フロック懸濁液の相転移』化学工学会第79回年会、2014.3.、岐阜

大井節男、中石克也、山下昌矩、森下陽介、『界面沈降測定を用いた懸濁粘土の構造決定』、化学工学会第78回年会、2013.3.

大井節男、中石克也、河内美樹、西村奈津希、『界面沈降を利用した粘土懸濁液における圧縮降伏応力とせん断降伏応力の決定』、第47回地盤工学発表会、2012.7.、八戸

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

中石 克也 (NAKAISHI KATSUYA)
茨城大学・農学部・教授
研究者番号：40180236

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

大井 節男 (OOI SETSUO)
(前) 農林水産省農村工学研究所・資源循環工学研究領域・研究員