

氏 名 ( 本 籍 )	おお くに しげ もり 大 谷 茂 盛 ( 長 野 県 )
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 第 7 号
学 位 授 与 年 月 日	昭 和 4 0 年 2 月 3 日
学 位 授 与 の 要 件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
最 終 学 歴	昭 和 2 4 年 3 月 東 北 大 学 工 学 部 卒 業
学 位 論 文 題 目	粒 状 物 質 内 に お け る 水 分 移 動 に 関 する 研 究
論 文 審 査 委 員	教 授 ( 主 査 ) 前 田 四 郎 教 授 梅 屋 薫 教 授 河 上 房 義

---

## 論 文 内 容 の 要 旨

### 第 1 章 緒 論

本研究を行なった動機およびその目的、またその研究対象の範囲について述べた。

化学工学における単位操作の一つに「乾燥」という分野がある。各種の工業において、この問題の適切な解決が、その工場の生産性および経済性を右左する場合がしばしばある。しかしながら、一概に乾燥といっても、材料が多種多様で、その性状が広い範囲にわたるため、従来は主として操作および装置的研究が先んじ、その場合場合に応じて問題を解決する方法がとられてきた。

これを乾燥の機構という立場より、統一的に取扱うところみが、昭和の初め頃より、国内の外でなされてきたが、確定的な理論体系は未だ完成されていない。むしろ、機構究明の研究はその緒についた許りで前途遠たる現状であるという感が深い。

乾燥は周知の如く、熱と物質の同時移動現象であり、これを大別すると一般に、(1)熱源より境膜をとおして蒸発面への伝熱現象、(2)蒸発面における潜熱の消費による蒸発現象、(3)発生した蒸気の内部および境膜を通して外界への蒸気移動現象、(4)物体の温度上昇に必要な伝熱現象、(5)物体内部から蒸発面への液状水の移動現象などである。これらの移動現象が乾燥方法と乾燥過程に応じて、またそれぞれの物質の性状に影響され、複雑に組合されて一つの乾燥現象を呈する。

乾燥機構の抜本的究明はこれらの移動現象の一つ一つを完全に把握し、それらの相互関係を明白にしなければならないが、その一段階として、項目(5)について、本題「粒状物質内における水分移動」の立場より研究をこころみた。

それは項目(1)(2)(3)および(4)に関しては、乾燥にたづさわる人々、および伝熱の分野あるいは拡散の分野などで、相当の解析が進められているが、項目(5)に関する研究がもっともおくらせていると考えたからである。

本文では粘土のような微細粒子層についても少しくふれたが、大部分は篩分けできる程度の、比較的粒径の大きな粒子層を対象とした。

## 第2章 粒状物質内の水分移動に関する考察

湿った物質内の水分移動に関する従来の研究結果に対して考察を加え、その検討を行なった。

粒子層内の水分移動に関しては、古くより土壌学の分野において、また土質力学、採鉱学、採油学などにおいて、一方化学工学においては滲過、乾燥、充填層内における液流れ、脱水操作、また湿った物質の伝熱などの諸分野において、それぞれ独自の研究が行なわれてきた。

各分野における取扱いについて概説したが、層内の水分移動の起動力になにをとるかによって、次の三つに分類される。

(1)水圧勾配  $\Delta P/\Delta x$  , (2)含水率勾配  $\Delta \phi/\Delta x$  , (3)サクション・プレッシャ勾配  $\Delta P/\Delta x$  , (1)は滲過とか圧密透水試験などのように、層内の間隙が全部、水で満たされている場合にとられる手法である。

ところが、或る含水率の粒子層内、すなわち層内に空気が存在し、funicular 状態での水の流動を論ずる場合は、水圧の概念がいささかつかみにくい。直接簡単に測定可能な(2)により、層内水分移動が拡散理論に従うとして、Fickの法則を適用した取扱いが、古くより乾燥の分野で行なわれてきた。粒状物質のごとく、不均質層における起動力に(2)をとるのは理論的でなく、ために、拡散係数に相当する水分移動係数が、含水率によって非常に大きく変化することを指摘した。

これに対して(3)を起動力にとり、毛細管理論にもとづいて、粒子層内の液状水移動を取扱った報文も相当数多く発表されて、定性的には良く現象を説明しているが、量的な解析は未だ充分なされていない。

熱伝導をともなう水分移動については、湿った物質の熱伝導率測定、乾燥および保温保冷の伝熱問題を取扱う場合、つねにこの現象が対象となる。温度勾配下における水分移動および水分分布に関する実験的研究は数多くあるが、これを定量的に解析した報告がみあたらないことを述べた。

### 第3章 粒状物質内における液状水移動の起動力

物質内の水分移動をあずかる要因を列挙し、液状水移動の起動力として、何をとりのが理論的であり、また数的に取扱う場合理解しやすいかを論じた。

固・液・気相系からなる一般の湿った粒状物質内では、概念のつかみやすい吸水力の勾配をとって取扱われてきた。吸水力として用いられるサクシヨン・ポテンシャルとサクシヨン・プレッシャの用語は、現在全く混同して使用されているが、この両者の関係を明らかにした。サクシヨン・ポテンシャルとは、土壌から吸水力にさからって、単位質量の水を抜き出すに必要な仕事を表わすときに定義される物理量であって、サクシヨン・プレッシャとは次元もことなる。両者が混同されて使われている要因を考察し、粒状物質の吸水力という概念に対する理解を深める一助とした。粒状物質を取扱う場合、プレッシャでもポテンシャルでも含水率の一義的な状態値として取扱えないので、直接測定値として得られるサクシヨン・プレッシャを使った方が現象に即して理解しやすいことを述べた。

水そのものの動きは水圧によって論ずるのが、もっとも理論的であり、粒状物質の場合は概念のつかみやすいサクシヨン・プレッシャ  $p$  で代用した。 $p$  の原因はわん曲した気液界面に作用する界面張力であり、Laplace の式  $p = \sigma \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \cdots \cdots (3.8)$  で表わされる。すなわち、メニスカスをはさんだ両流体間の圧力差であり、気圧を  $P$ 、水圧を  $p'$  とすると  $p = P - p' \cdots \cdots (3.12)$  である。 $P$  一定のときのみ、 $p$  と  $p'$  の勾配の絶対値がひとしく、サクシヨン・プレッシャを用いて数的な取扱いを行なっても誤りでない。

したがって、飽和の含水率より漸次水が減じて行く場合とか、含水率の少ない粒子層では、内部の空気が互に連絡されており、 $P$  一定と考えられるから、 $\Delta p / \Delta x$  を起動力にとりうる。しかし、含水率の大きい粒子層を形づくり、これに温度勾配を与えた場合、あるいは急速な脱水操作の過渡状態では、層内の場所による  $P$  は一定とみなすことができず、かかる場合の数的取扱いには、別の考慮が必要であることを指摘した。

## 第4章 粒子層におけるサクシオン・プレッシャ

含水率との関係が比較的容易に実測されるサクシオン・プレッシャについてくわしく論じた。これはキャピラリ・サクシオン・プレッシャとオスモティック・サクシオン・プレッシャの二つに別けられる。

キャピラリ・サクシオン・プレッシャは界面張力に起因する吸水力であり、粒子相互によって形づくられた間隙の毛細管現象によるものである。篩分けできる程度の比較的粗い粒子層に対して支配的に働く。

それ以下の細かい粒子層に対しては、オスモティック・サクシオン・プレッシャが影響力をもつようになる。1 $\mu$ 前後のこまかい、乾燥にさいして収縮をとまなうような粒子層に対しては、オスモティック・サクシオン・プレッシャが支配的に働くことを、粉体工学および電気化学の概念を引用して説明した。そして、従来の測定装置に対して、検討を行ない改良を加えた新しい装置を試作した。

キャピラリ・サクシオン・プレッシャ  $p$  について、従来の測定方法を吟味し、比較的精度ある実験を行ない、含水率  $\varphi$  との関係を求め、 $p-\varphi$  曲線で示し、種々の性格を明らかにした。

とくに、 $p$  におよぼす温度  $t$  の影響について、量的な関係を求めた。ある粒子層において、常温  $t_0$  における  $p-\varphi$  の関係を測定しておけば、任意の温度における  $p$  の値はその温度における表面張力  $\sigma$  のみを補正することにより決定できる。 $p(\varphi, t) = p(\varphi, t_0) \frac{\sigma}{\sigma_0} \cdots \cdots (4.15)$

また、粒子層の  $p-\varphi$  曲線において、増水時と減水時とでは、いわゆる履歴現象を示すが、その理由について説明を加えた。

さらに、従来のキャピラリ・サクシオン・プレッシャに関するすべての研究は、飽和の含水率にある層よりの減水、あるいは減水されたその層への増水について論じたものであるが、ここでは、任意の含水率の粒子層をつくった場合の、その含水率における  $p$  の値、およびその層が減水または増水する場合の  $p-\varphi$  曲線を求めた。その結果、かかる粒子層のサクシオン・プレッシャは、飽和の含水率より漸次減水して求めた粒子層が示す従来の  $p-\varphi$  曲線とは、全く別の軌跡を画くことを見出した。

## 第5章 湿った粒状物質内における水分移動の機構

湿った粒状物質内における水分移動に関する機構について述べた。粒子層の温度が一定の場合、温度差のある場合について論じた。

篩分けできる程度の比較的粒径の大きい粒子層について、液状水の起動力に  $\Delta p / \Delta x$  をとり、

粒子相互によって形づくられる間隙を大小様々な毛细管（その周壁には小孔がはいている）の束よりなるモデルでおきかえ、流動抵抗に Poiseuille の法則を適用して、恒温定常下における水分移動を表わす理論式を誘導した。この際、にわかに決定できない毛细管の径、およびその分布は先に解析した  $p-\varphi$  の関係を用いて式示した。水平粒子層における水分移動速度  $G_w$  は

$$G_w = \frac{\alpha g_c \rho_w}{8 \mu} \left[ \int_{p_{\max}}^{p_x} \left( \frac{2\sigma}{p} \right)^2 \frac{d\varphi_v}{dp} dp \right] \frac{dp_x}{dx} \dots\dots\dots (5.7')$$

上式において、積分項は試料の  $p-\varphi$  曲線を図積分することによって求まり、係数  $1/\alpha$  の値がわかっておれば、層内を移動する水の量  $G_w$  を測定することにより、 $p$  の分布、すなわち  $x$  方向の水分分布を求めることができる。

誘導した水分移動速度式と代表的な従来の取扱いとを比較検討した。式 (5.7') により、いままで用いられていた透水係数（抵抗の逆数）、あるいは水分拡散係数の内容を解析したことになる。

温度勾配下における蒸気状および液状の水分移動に対する理論式を示し、さらに、その粒子層をつつみ外部に水分が逃げないようにした場合の定常状態における層内の水分分布を求める理論式を誘導した。

$$\frac{d\varphi_v}{dt} = \frac{\frac{BD}{RT} \frac{P_0}{P_0 - P_s} \frac{dP_s}{dt} \frac{\sigma_0}{\sigma}}{\frac{g_c \rho_w}{\mu}} \times \frac{(\varepsilon - \varphi_v) \left( \frac{d\varphi_v}{dp} \right)_{t_0}}{\frac{\alpha}{8} \int_{p_{\max}}^{p_x} \left( \frac{2\sigma}{p} \right)^2 \frac{d\varphi_v}{dp} dp} - \frac{d\sigma}{dt} \times p(\varphi_v, t_0) \left( \frac{d\varphi_v}{dp} \right)_{t_0} \dots$$

..... (5.17)

すなわち、温度分布が実測され、その試料粒子層の平均含水率がわかれば、前式を数値計算することにより、温度勾配下の水分分布を求めることができる。式中の  $(d\varphi_v/dp)_{t_0}$  および  $(d\sigma/dt)$  は負であり、したがって、 $\alpha\varphi_v/dt$  は負である。つまり式 (5.17) は高温域において含水率が小なることを表わしている。右辺第1項を動的平衡の項、第2項を静的平衡の項と名づけ、それぞれの内容を説明した。

先にモデルを設定して理論式 (5.7') をみちびいたが、その際補正係数として  $1/\alpha$  を導入し、径路係数と名づけた。この係数の物理的意味を説明し、さらに測定方法に対して吟味を行ない、精度ある装置を考案試作して実験を行ない、得られた値に対して考察をこころみた。径路係数は流路の屈曲、断面の形状以外に、粒子表面と水との結合力などの影響をうける総合的な補正係数であり、粒子層の種類によってことなるほか、同じ粒子層でも含水率の関数となることを述べた。従来、この  $1/\alpha$  に相当するものをジグザグ係数と呼んでおり、含水率に無

関係を一定値が与えられていた。これは蒸発実験の測定精度の欠陥より来る誤差のためであろうと予想して、試作された径路係数測定装置により、比較的、信頼性のある値を求めることができた。 $1/\alpha$ は含水率の減少に対して、ほぼ指数関数的に増大する。飽和の含水率近くでは $1/\alpha$ は約1.5という値がえられたが、これは沪過などにおける固・液系流動の際によく用いられるKozeny - Carmanの式の実験常数の内容とほぼ一致することがわかった。実験を数多く行なった球形ガラス粒子層についての径路係数と含水率 $\varphi$ との関係を実験式で示すと次式で表わされる。

$$1/\alpha = 1.5 e^{15(0.21-\varphi)}, \quad (0.04 < \varphi < 0.21) \cdots \cdots (5.25)$$

或る含水率の粒子層をかたちづくり、外部に水分が逃げないようにして、粒子層に温度勾配を与えた場合の定常状態における水分分布を実測し、先に誘導した理論式(5.17)と比較検討した。得られた実験値は理論曲線とよい一致を示した。ただし、高含水率で粒子層をかたちづくった場合は、第3章で述べたごとく、層内の空気は分離しており、高温域、低温域での気圧は等しくならない。したがって、キャピラリ・サクション・プレッシャを液状水移動の起動力として用いることはできない。水圧そのものの勾配を起動力としてとり、水分分布に支配的に働く静的平衡の項について、解析をこころみ、層内の空気が隔離されているような高含水率の粒子層の温度勾配下における水分分布を求める式をみちびき、かかる場合の実験結果を説明した。温度勾配下における水分分布に関しては、古くより多くの実験的研究があるが、定量的に解析した例はみあたらない。ここでは、水分移動の機構を究明する一つ的手段として、一応定量的な解析に成功したことを述べた。

## 第6章 研究成果の適用例

この研究によって得られた成果が、直接本研究の対象としている範囲外の分野で、適用される例について簡単に説明した。

すなわち、粒子層内の水分移動およびその起動力に関して、乾燥機構解明のためにいささか知見が得られた以外に、粒子層表面における濡れ面積の推定、脱水操作、気・液・固相系の諸装置における液流れ、熱と水分の並び流れによる乾燥、およびオスモティック・サクション・プレッシャの測定による微細粒子層内の液流れ等々に関する研究に対して、今後何らかの役割を演ずるであろう。

## 第 7 章 結 論

結論として、本論文を要約して述べた。

取扱った研究の内容は、乾燥機構の究明という観点からみれば、正に氷山の一角にすぎないであろうが、ここで得られた成果を核として、今後、総括的な乾燥の機構解明へ新たな道をきりひらいて行きたいと念願している。

## 審 査 結 果 の 要 旨

一般に粉体内における水分移動は土木工学，鉱山工学，化学工学に広く現われる現象である。特に化学工学においては，乾燥をはじめ濾過，脱水，成型その他非常に多くの操作の基礎をなしている。乾燥は熱と物質の同時移動現象であり，伝熱や拡散そのものは比較的明らかにされているにもかかわらず，粉体の乾燥機構は定性的にしか解明されていないのは，粉体層中の水分挙動が明白でないためと考へても過言でない。本論文は，粉体として篩分けしうる程度の粒子層を対象として，乾燥の機構を解明する目的で，まず粒子層中の水分の移動について研究したもので7章よりなる。

第1章は，総論で本研究の目的を述べている。

第2章では既往の文献に対して水分移動の駆動力の立場から考察を加えた。すなわち，従来は，(1)水圧勾配，(2)含水率勾配，(3)サクシヨン・プレッシャー勾配を用いているが，このうち(1)は乾燥のように層内に空気が入り繊維域の状態になると水圧の概念が明確でなくなり，(2)の含水率 $\varphi$ は直接測定が可能のためよく使用されるが含水率を駆動力にとることに疑問があり，また(3)は定性的に解釈されているに過ぎない等それぞれ欠点があることを指摘している。

第3章では，従来この水分移動の駆動力としてサクシヨン・ポテンシャル，サクシヨン・プレッシャー $P$ を混同して使用していたうらみがあったが，ポテンシャルと $P$ および $P$ と水圧との関係を解明することにより，駆動力としては広義の水圧が最も適当であり， $P$ を用いするのは外圧一定のときに限ることを示した。

第4章では，粒子層中の $P$ の性状を検討している。すなわち， $P$ の測定装置に改良を加え， $P$ に及ぼす温度 $t$ の影響を定量的に検討した結果，表面張力 $\sigma$ で補正し， $p(\varphi, t) = p(\varphi, t_0) \times \frac{\sigma}{\sigma_0}$ なる関係を得ている。また，任意の含水率の粒子層をつくりこの増水・減水時の $P - \varphi$ 関係をしらべ，履歴現象を確認している。これらは $P$ に対する新しい知見である。

第5章は，本論文の主題である。まず粒子層相互によって形づくられる間隙を大小さまざまな毛細管の束よりなるモデルで代表せしめ， $\Delta P$ を駆動力とし，流動抵抗としてはPoiseuilleの法則を適用して恒温下の水分の移動式を誘導した。これと類似のモデルはKrischerも考へているが駆動力として含水率をとり，拡散係数の変化を毛細管の分布として表わしたため，毛細管直径やその分布を解析するには到っていない。本論文では $\Delta P$ を駆動力として考へたので含水率と $P$ の関係から粒子層間隙の径や分布を直接計算によって求めうる長所がある。また理



論式の中には径路係数  $1/\alpha$  (通路の拡大, 縮少や曲がりおよび水と粒子表面との結合力等に対する補正係数) を含んでいる。従来これは一定値として取扱われたものであるが, 巧妙な測定により粒子層の水分分布より  $1/\alpha$  を求め,  $1/\alpha$  が含水率の減少に対してほぼ指数関数的に増大し, 飽和の近くでは, 約 1.5 になることを示した。これは濾過等に用いられる Kozeny-Carman の式の恒数とほぼ一致し満足すべきものと考えられる。

つぎに温度勾配下における蒸気状および液状の水分移動については実験的研究はあるが, まだ定量的には解析されていない。著者は蒸気圧差による蒸気拡散と, 温度および含水率の差に基因する  $\Delta p$  による水の移動を考え温度勾配下の水分分布を理論的に求め, 実測値との一致を確認している。

第 6 章は, 本研究によって得られた成果を適用しうる例をのべている。P の測定による遠心および重力脱水操作, P と粒子層表面の濡れ面積から類推しうる恒率乾燥機構, 湿った粒子層の熱伝導や保冷時の伝熱等, 工学上の諸問題への応用のほかに熱と水分の並び流れによる粘土成型品の乾燥法に応用して, 乾燥時間を従来の数分の 1 に短縮した例もあげている。

第 7 章は総括である。

以上要するに本論文は, 粒子層における P の性状を明かにし, さらに粒子層を大小さまざまな手細管でモデル化し, これに上記の P と含水率の関係を導入することにより, 従来, 実験的には研究されていても, 理論的には極めて不十分であった「湿った粒状物質内の水分移動」機構を究明したもので化学工学ならびに工業上寄与するところが少なくない。

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。