

2 成分溶液を含む砂層の乾燥機構

吉田 正道, 佐竹 行弘, 山田 修,
八木 雅彦, 宮下 尚

緒 言

被乾燥材料に含まれる湿分は通常水あるいは単成分溶媒であるが、場合によっては、混合溶液を含む材料を乾燥する必要が生じることがある。工業的には食品、薬品、磁性材料、粒状合成製品等の乾燥にその例が見受けられる。このような多成分溶液の乾燥では、製品の高品質化に伴って材料内成分分布の制御や特定成分の選択的除去といった高度で厳密な乾燥技術が要求される場合も多い。こういった目的に沿う乾燥器を適切に設計するためには、乾燥速度曲線が不可欠であり、多成分溶液の場合にはさらに湿分の組成を平均含水率の関数として（これを組成曲線という）知る必要がある。そのためには多成分乾燥における物質移動機構を十分理解しておかなければならない。このような背景から Schluender^ら^{1,2)}は、イソプロピルアルコール（以下IPAと略す）－水の2成分溶液を含む多孔質材料について研究を行い、特定成分の選択的乾燥や、2成分溶液の湿球温度の推算法について明らかにした。しかしながら材料内部における溶液の物質移動機構については未だ十分な説明はなされていない。

そこで筆者らは多成分溶液を含む材料層における乾燥機構を解明するための基礎的段階として、IPA－水の2成分溶液を含む非親水性粒状材料層の乾燥において、比較的粒子の細かい粒状物質である砂を対象として乾燥実験を行い、乾燥速度、材料内温度分布、及び含水率分布を求め、境界、及び材料内部における物質移動機構について検討した。またIPA水溶液の初期組成が変化した場合、乾燥挙動にどのような影響を与えるのかを検討した。

1. 実験装置および方法

1-1 実験装置

実験装置の概略図をFig. 1に示す。ブローアから送られる空気はヒーターにより設定温度まで温められ乾燥流路内を流れる。空気流れを均一にするため流路内には攪拌板、及び整流板が設置されている。また流路下流には試料容器と同径の穴が設けられており、試料表面が流路底面と同じ高さになるよう試料容器が設置され、そこから試料表面が乾燥空気にさらされる。ただし容器の乾燥面以外は発泡スチロールで断熱されている。この試料容器は電子天秤上に設置されており、試料重量の定期的測定が可能となっている。なお、この装置では湿度の制御を行っていないため、外部の空気が直接取り込まれる。空気湿度は定期的にアースマン乾湿計を用いて測定した。

試料として、篩いわけを行い粒子径を297~420 μm (35~48 μm)に揃えた砂を使用する。また、全ての実験において空隙率 $\varepsilon = 0.38$ で一定となるよう充填する砂の質量を固定した。

2-2 実験方法

本研究では、乾燥速度、材料内温度分布の測定と含水率分布の測定を行うために Fig. 2 に示される 2 種類の試料容器を使用した。Fig. 2-(a) に示される容器 (内径 $3.65 \times 10^{-2} \text{m}$, 高さ $1.80 \times 10^{-2} \text{m}$, 乾燥面積 $1.05 \times 10^{-3} \text{m}^2$) はテフロン製の材料温度測定用であり、これに試料を充填させ、平衡に達するまで乾燥を行う。このとき電子天秤により乾燥中の試料重量の測定を定期的に行い、この重量変化より乾燥速度を算出する。また容器底面、中心、及び表面には 0.1mm クロメル-アルメル熱電対が設置されており、これによって材料内の局所温度分布を測定する。

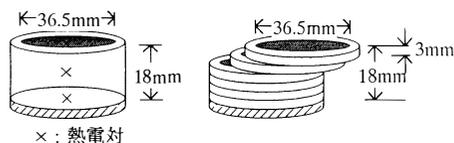
含水率分布の測定には Fig. 2-(b) に示されるような容器を使用した。この容器は大きさが同じ 6 つのリングからなっており、積み重ねたときの寸法は上述の容器と等しい。実験の際は溶液漏れがないようリング接合部にワセリンを塗り、さらに容器まわりをテープで固定した。これに試料を充填し目的の含水率に達するまで乾燥を行い、その後、各層を分取し残存溶液の組成を分析することにより含水率分布を求めた。なお、IPA 濃度が高い場合の分析には密度法を用い、IPA 濃度が希薄になり、密度法による計測が困難な場合は、熱伝導度型ガスクロマトグラフィーを使用した。

上記の分析により、各層における溶液、IPA、および水の質量濃度 ρ_T, ρ_1, ρ_2 が求められる。しかし、質量濃度 ρ は初期組成や温度によってその初期値が変化するため取り扱いにくい。そこで本研究では次式で定義される空隙基準含水率 φ を使用する。

$$\varphi_T = \rho_T / d_{1,T} \cdot \varepsilon \quad \varphi_1 = \rho_1 / d_{1,1} \cdot \varepsilon \quad \varphi_2 = \rho_2 / d_{1,2} \cdot \varepsilon \quad (1)$$

ここで d_i は溶液の密度である。 d_i は組成、または温度によって変化するため、実験から φ を求める際は材料温度と溶液組成を考慮して d_i を求めた。

また、実験条件を Table 1 に示す。



(a) 材料温度測定用 (b) 含水率分布測定用
Fig. 2 実験容器

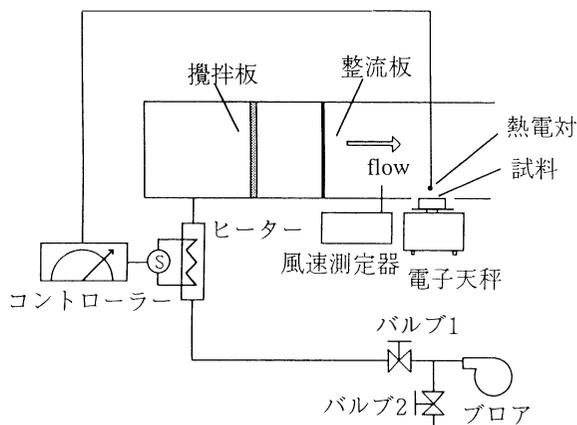


Fig. 1 実験装置の概略図

Table 1 IPA 水溶液の初期組成 (IPA : 水)

Run	$\omega_{1,0}$	質量比	モル比
1	0.0	0.0:1.0	0.00:1.00
2	0.2	0.2:0.8	0.07:0.93
3	0.4	0.4:0.6	0.17:0.83
4	0.6	0.6:0.4	0.31:0.69
5	0.7	0.7:0.3	0.41:0.59
6	0.8	0.8:0.2	0.55:0.45
7	1.0	1.0:0.0	1.00:0.00

風速 0.3m/s , 空気温度 35°C

2. 実験結果及び考察

2-1 境界における物質移動

2-1-1 乾燥速度曲線，材料温度変化と初期組成の相関 各初期組成における乾燥速度曲線を Fig. 3に示す。縦軸は乾燥速度，横軸は次式で示される体積基準の無次元含水率で，1が満水，0が絶乾状態を示す。

$$\bar{m} = \int_0^1 \varphi_T / \varphi_{T,0} d\phi \quad (2)$$

また，Fig. 4は材料表面温度と含水率の関係を示したものである。実験では材料の表面，中央，および底面の3ヶ所の温度を測定したが，いずれの条件においても3点の最大温度差は乾燥の全期間を通して1.0℃以内であった。従って材料内には温度分布はないとみなして差支えない。

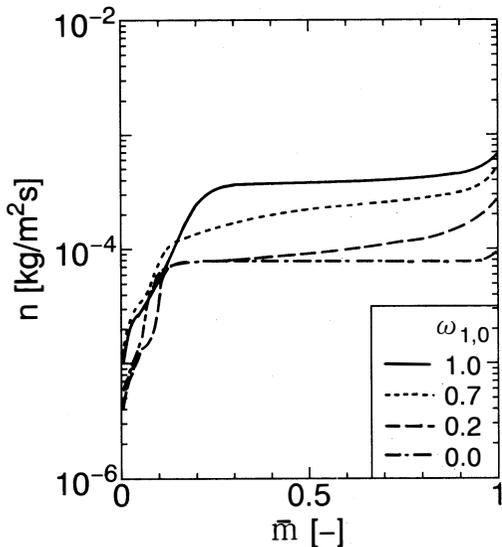


Fig. 3 乾燥速度曲線

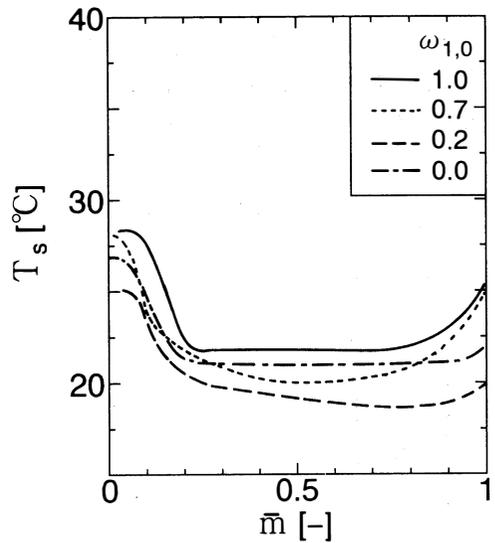


Fig. 4 材料温度変化 (表面)

移動成分が単成分の場合， $\omega_{1,0}=1.0, 0.0$ ともに明確な恒率期間が現れており，材料表面温度もこの間一定値を示している。恒率期間から減率期間へ移行する含水率（限界含水率）は，IPAのほうが高い。これはIPAの乾燥強度が水に比べて大きい材料内部の含水率勾配が急になり，材料内に多くの溶液を保持したまま限界含水率に達してしまうためである。

一方，移動成分が混合溶液の場合の乾燥速度は，単成分乾燥とは異なり一定値をとらず徐々に減少しているのがわかる (Fig. 3)。このとき材料表面温度も上昇する (Fig. 4)。Fig. 5は表面におけるIPAの質量分率 $\omega_{1,s}$ を平均含水率 \bar{m} に対してプロットしたものである。このように $\omega_{1,s}$ は乾燥の進行に伴い減

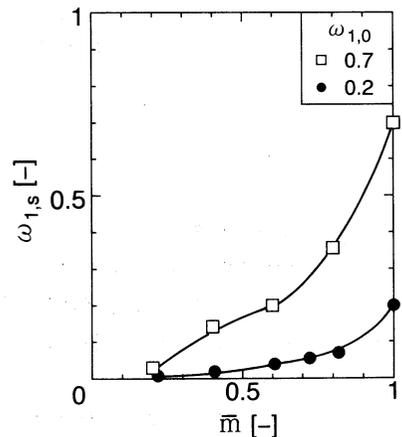


Fig. 5 表面組成変化

少しており、表面の溶液は徐々に水 Rich の状態になっていくことがわかる。IPA 水溶液の飽和蒸気圧は ω_1 に伴って減少するから、乾燥速度減少の原因は表面組成の変化にあるといえる。

2-1-2 初期組成の変化に伴う各成分の乾燥速度 2成分溶液の実質的な乾燥速度は各成分の乾燥速度の和として次式で表わされる。

$$n = n_1 + n_2 \tag{3}$$

ここで境膜物質移動係数 kg が気相中の組成の影響を受けず各成分の乾燥速度 n_1, n_2 は単成分乾燥と同様、

$$n_1 = kg_1(p_1 - p_{1,a}), \quad n_2 = kg_2(p_2 - p_{2,a}) \tag{4}$$

で表わされると仮定する。このとき、実験より表面組成、及び材料表面温度がわかれば n_1, n_2 を推算することができる。Fig. 5 に示した表面組成変化と Fig. 4 の材料温度変化から p_1, p_2 を求め(4)式により推算した $\omega_{1,0} = 0.2, 0.7$ のときの乾燥速度を実験値と併せて Fig. 6 に示す。ただし、 kg の値は単成分乾燥から得られた値 ($kg_1 = 8.11 \times 10^{-8}, kg_2 = 6.40 \times 10^{-8} \text{ kg}/(\text{m}^2 \cdot \text{Pa} \cdot \text{s})$) を用い、乾燥空気中には IPA が存在しないものとし、 $p_{1,a} = 0$ とした。

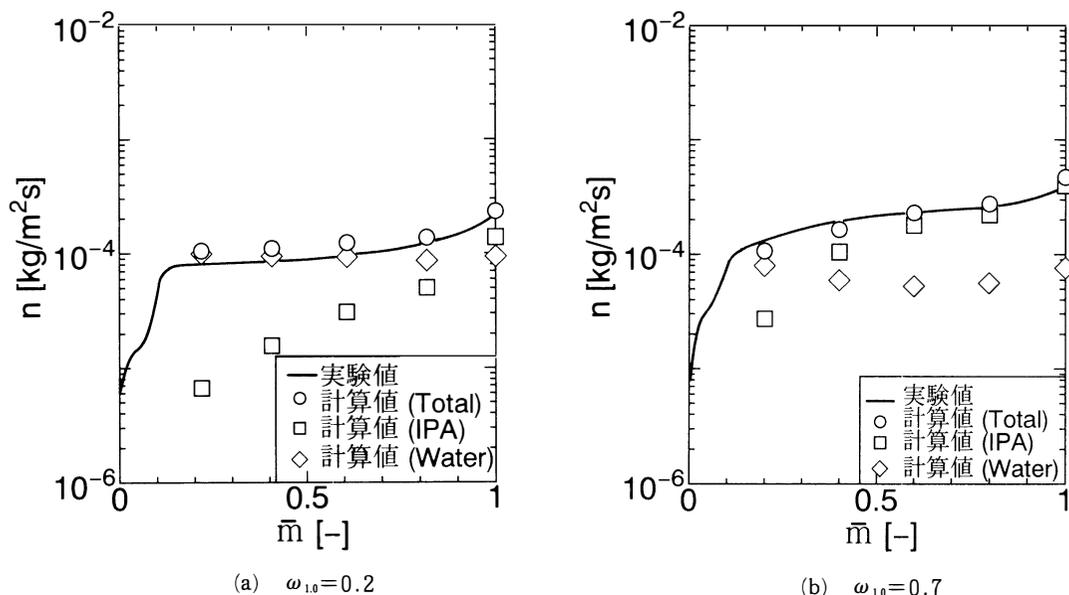


Fig. 6 乾燥速度曲線 (推算値)

Fig. 6 をみてもわかるように、どちらの初期組成とも実測された乾燥速度と推算から得られた Total の乾燥速度との一致は比較的良好である。従って kg は気相中の組成の影響をほとんど受けないとみなしてよく、さらに各成分の推算値も妥当であるとみなすことができる。そこで(4)式から求めた n_1 と n_2 をもとに各成分の乾燥速度について考察する。

$\omega_{1,0} = 0.2$ の場合(a)、水の乾燥速度は緩やかに上昇し、IPA の乾燥速度は大きく減少している。また、Fig. 5 をみるとこの初期組成における表面組成の変化は乾燥の進行に伴って減少している。これらより、表面組成の変化に伴う水の蒸気圧の変化が小さい反面 IPA の蒸気圧は大きく減少し、また IPA の乾燥速度の絶対値は水の乾燥速度の絶対値に比べてかなり大きい (Fig. 3)。その結果、IPA の

乾燥速度が大きく減少するとTotalの乾燥速度もまた大きく減少する。

$\omega_{1,0}=0.7$ の場合(b), 各成分の乾燥速度は $\omega_{1,0}=0.2$ と同じ傾向を示していることがわかる。また表面組成変化をみると, 乾燥の進行に伴って減少していることからこの理由は先述したことと同様である。

2-2 材料内部における物質移動

2-2-1 含水率分布からみた物質移動 含水率分布測定結果の例として $\omega_{1,0}=0.2, 0.7$ におけるTotal, 水の含水率分布をそれぞれFigs. 7, 8に示す。縦軸は空隙基準含水率, 横軸は無次元距離であり, 材料底面で0, 材料表面で1である。

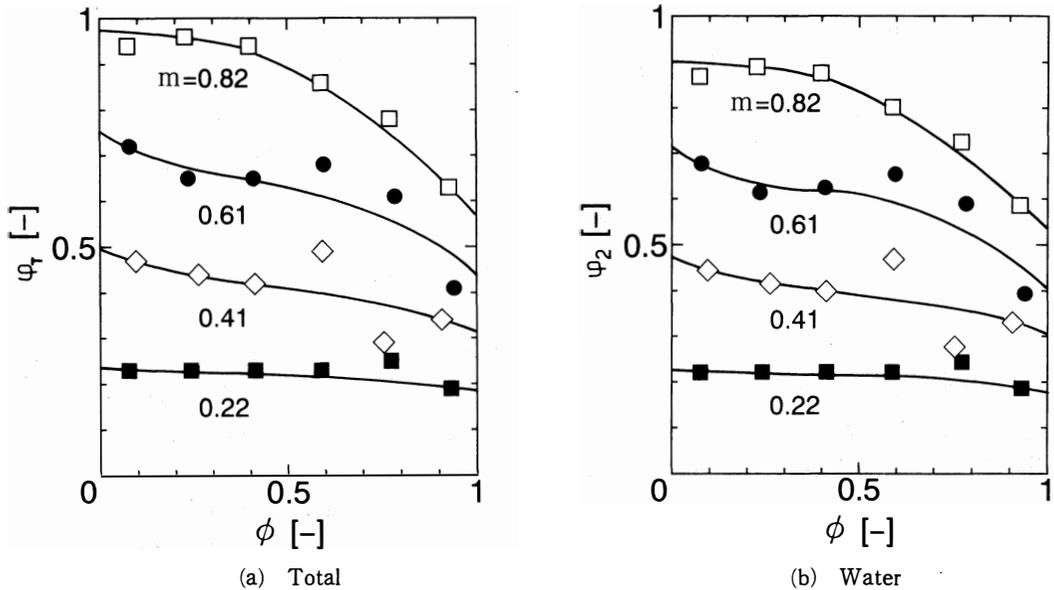
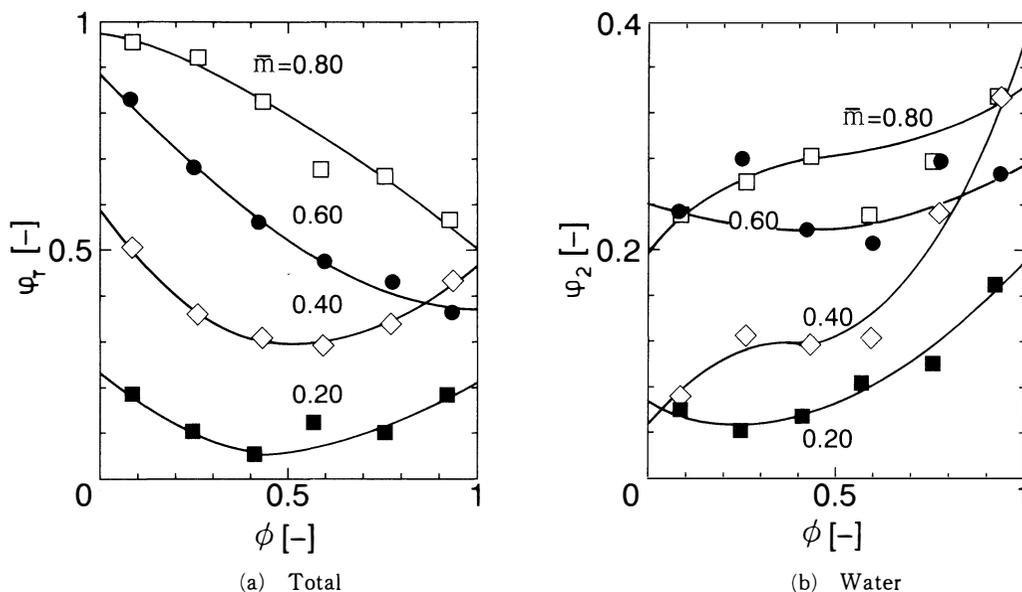


Fig. 7 含水率分布 ($\omega_{1,0}=0.2$)

Figs. 7, 8からわかるように両初期組成とも材料底面の含水率勾配はゼロではない。これは重力の影響によるものであり, 本研究で用いた材料においては重力が無視できないことが分かる。

$\omega_{1,0}=0.2$ の場合 (Fig. 7), Totalの含水率分布(a)をみると, $\bar{m}=0.82$ では材料底面付近の含水率勾配はほとんどなく, ここから表面に向かって大きな勾配が生じている。 $\bar{m}=0.61$ になると, 材料内部全体にわたって含水率勾配が生じ, その後乾燥が進行すると $\bar{m}=0.41$ で示すように含水率勾配は材料底面から消滅していく。そして $\bar{m}=0.22$ においては, 含水率分布はほとんど平坦な形状を示すようになる。一方, 水の含水率分布(b)をみるとその分布形状はTotalの分布とほぼ同じである。これはIPAが材料内にほとんど存在していないために水の含水率分布がTotalの分布形状を支配しているからである。

$\omega_{1,0}=0.7$ の場合 (Fig. 8), Totalの含水率分布(a)では $\bar{m}=0.80\sim 0.60$ において材料底面から表面にかけて大きな含水率勾配が生じている。 $\bar{m}=0.40, 0.20$ になると材料底面から中央部にかけての含水率勾配は減少しているが, そこから表面に向かうに従って含水率が増加するという含水率勾配の逆転が生じるようになる。これは単成分乾燥では決して観察されない現象である。ここで水の含水率分布(b)をみると, 勾配の逆転が起こっている含水率域では材料底面から表面に向かって含水率は大きく

Fig. 8 含水率分布 ($\omega_{1,0}=0.7$)

上昇している。この結果より、Totalの含水率分布で観察された勾配の逆転現象は水の含水率分布に多大な影響を受けていることがわかる。この初期組成で得られた結果のように水の含水率が表面で大きく増加する原因として、IPAの優先的蒸発により水が材料表面で取り残され蓄積されていき、試料表面において水の占める割合が相対的に増加することが挙げられる。

2-2-2 材料内部における溶液移動の推進力 $\omega_{1,0}=0.7$ で観察されたように混合溶液を乾燥させた場合、含水率勾配の逆転が生じることがある。移動成分が単成分であるときこの現象は決して見られない。毛管吸引力 p_c は、

$$p_c = 2\sigma \cdot \cos \theta / r_{c,max} \quad (5)$$

で表わされる。 p_c は溶液の占めている毛細管半径が小さいほど大きくなるため、移動成分が単成分の場合は常に含水率の小さいところへ溶液が移動するからである。しかし、移動成分が混合溶液の場合は溶液の表面張力が組成によって変化するため毛管吸引力分布は単純に含水率のみでは決定できない。

そこで $\omega_{1,0}=0.2, 0.7$ における材料内での毛管吸引力分布を次式により求めることにする。つまり多成分乾燥の場合の毛管吸引力 p_c は溶液で占められる毛細管の最大半径 $r_{c,max}$ 、IPA水溶液の表面張力 σ 、及び材料と溶液との接触角 θ により算出される。ここで σ はDu Nouy式表面張力計を用いて輪環法により実測した。また $r_{c,max}$ はHeinesの装置³⁾の改良型式を用いて測定した毛管吸引力と含水率の関係から得られる。計算するにあたり θ の値はゼロとした。これにより求められた材料内の毛管吸引力分布をFig. 9に示す。

この図より $\omega_{1,0}=0.2$ と 0.7 の両者とも毛管吸引力は、材料表面に向かって増加していることがわかる。特に $\omega_{1,0}=0.7$ で含水率勾配の逆転が観察された $\bar{m}=0.40$ における毛管吸引力も同様に表面に向かって増加している。この結果、材料内の溶液は毛管吸引力勾配を推進力とし、常に材料表面に向かって移動することがわかる。ここで低含水率域における毛管吸引力分布が記されていないのは、既に液状水として移動できる限界値を超えているためであり、これらの含水率では溶液は懸吊水として存在していることになる。

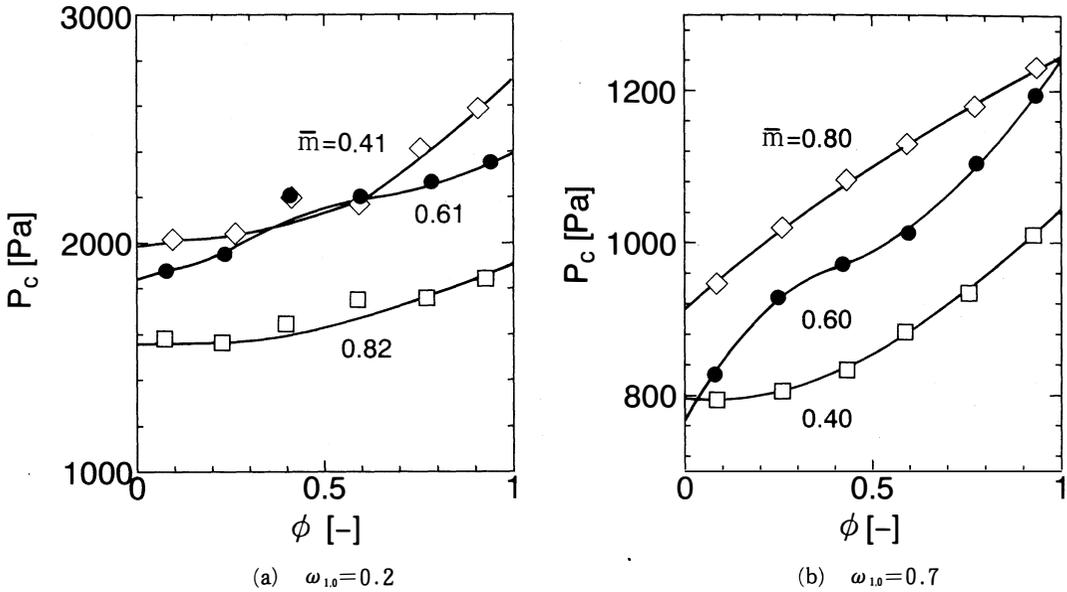


Fig. 9 毛管吸引力分布

結 言

IPA-水の2成分混合溶液を含む砂層の乾燥実験を行った。その結果、乾燥速度は材料表面における溶液の組成と温度に依存する。特にIPAが優先的に蒸発する場合、材料表面でIPAの比率が低下し、IPAの乾燥速度が著しく減少するため全体の乾燥速度は減少する。このとき組成の変化に伴って混合溶液の湿球温度が上昇するため、材料表面温度は上昇する。また境膜物質移動係数は気相中の組成の影響を受けない。

溶液は毛管吸引力勾配を推進力として移動するため、含水率勾配が逆転しても材料内の毛管吸引力分布は表面に向かって増加しているため溶液は常に表面へと移動し、その溶液は内部へ移動することなく乾燥が進行する。

謝 辞

本論文の作成に際し、富山大学大学院生矢部卓志氏（現在 中央電気工業㈱）、池上博志氏の御協力を頂いた。ここに感謝の意を表する。

使用記号

d_i : 密度	[kg/m ³]	t : 時間	[s]
kg : 境膜物質移動係数	[kg/(m ² ·Pa·s)]	ϵ : 空隙率	[-]
\bar{m} : 体積基準無次元平均含水率	[-]	θ : 接触角	[-]
n : 乾燥速度	[kg/(m ² ·s)]	ρ : 質量濃度	[kg/m ³ -材料]
p : 分圧	[Pa]	σ : 表面張力	[Pa·m]

p_c : 毛管吸引力	[Pa]	ϕ : 無次元距離	[—]
r_c : 毛細管半径	[m]	φ : 空隙基準含水率	[m ³ -liquid/m ³ -void]
T : 温度	[°C]	ω : 質量分率 (= ρ / ρ_T)	[—]

下添え文字

0 : 初期値, 1 : IPA, 2 : 水, T : 溶液, a : 空気, max : 最大値, s : 材料表面

参考文献

- 1) E.U.Schluender and F.Thurner: *Chem.Eng.Proc.*, **20**, 9 (1986)
- 2) E.U.Schluender and F.Thurner: *Chem.Eng.Proc.*, **19**, 337 (1985)
- 3) Haines, W.B.J: *Agric.Sci.*, **17**, 264 (1927)
- 4) 矢部卓志, 只木久仁治, 吉田正道, 宮下尚: 化学工学会富山大会講演要旨集 B13 (1993)

化学工学会富山大会 (1993年 5 月), 化学工学会山口大会 (1995年 7 月) にて発表。

Drying Mechanism of Sand Layer Containing Binary Mixture

M.Yoshida, Y.Satake, O.Yamada,
M.Yagi and H.Miyashita

Mechanism of mass transfer for drying of a sand layer containing binary mixture was studied experimentally. Aqueous solutions of isopropylalcohol with various compositions were used for the experiments. The drying process was examined in detail by measurement of the drying rate, the material temperature and the distribution of moisture content. The drying rate and the material temperature vary even for the period of surface evaporation. It was found that the drying rate and the material temperature are influenced by the composition of solution at the surface. Moreover, the reverse phenomena of moisture content gradient was observed for some initial composition. Even for such conditions, the capillary suction pressure monotonically increases towards the surface.

〔英文和訳〕

2成分溶液を含む砂層の乾燥機構

吉田 正道, 佐竹 行弘, 山田 修,
八木 雅彦, 宮下 尚

2成分溶液を含む砂層の乾燥における物質移動機構が実験的に研究された。様々な初期組成のIPA水溶液が実験に用いられた。2種類の試料容器を用いて乾燥速度, 材料温度, 及び含水率分布を測定することにより, 乾燥過程の詳細な考察がなされた。乾燥速度, 材料温度は一定値を示さないことや含水率勾配の逆転現象が観察された。混合溶液の乾燥速度と材料温度は初期組成に依存し, 材料内部における溶液の移動は毛管吸引力によって引き起こされることがわかった。