

博士学位論文審査要旨

2018年2月3日

論文題目： 微粒子スラリーのろ過設計に関する研究

学位申請者： 吉田 友一

審査委員：

主 査：同志社大学大学院理工学研究科 教授 白川 善幸

副 査：同志社大学 名誉教授 日高 重助

副 査：同志社大学大学院理工学研究科 教授 土屋 活美

要 旨：

粉体を原料とする製品の小型化や高性能化のため、最近では粉体の微粒子化が進んでおり、液中で作製された微粒子の回収手段として高精度かつ多量処理が可能な固液分離操作であるろ過の重要性がますます高まっている。微粒子スラリーのろ過では、従来対象としてきたサイズの粒子群に比べ、ろ過抵抗が飛躍的に大きくなるため、如何にろ過抵抗を低減するかが重要となる。しかし、微粒子になると静電気力や van der Waals 力といった粒子間相互作用の影響が顕著になり、ろ過挙動を正確に予測することが難しく、微粒子スラリーのろ過操作設計は困難を極めている。そこで本論文では、微粒子スラリーのろ過抵抗の低減を実現するために、ろ過操作設計におけるろ材抵抗、スラリー凝集・分散状態、ケーキ抵抗の予測に関する検討を行った。ろ材抵抗の予測では、織金網ろ材の幾何学特性と流体抵抗の関係を明らかにするため、格子ボルツマン法による流体透過シミュレーションを行った。織金網の抗力は金網の体積率や金網内部の流路のねじれと相関があることがわかり、織金網の体積と表面積から定義した代表長さや金網内部の流路のねじれ率から、織金網の圧力損失推算式を導出した。次に、スラリーの凝集・分散状態はスラリー粘度に影響を及ぼすことから、スラリー粘度による凝集状態の予測について検討した。また、DEM-DNS 連成シミュレーションにより、様々な凝集構造を与えたスラリーのせん断流れ場における粒子挙動やスラリー粘度を調べた。スラリー粘度は同じ固体濃度（粒子濃度）でも凝集状態によって違いが見られ、せん断流れ場において低い速度勾配となっている領域も固体とみなした見かけの固体濃度を定義することで、このスラリー粘度と凝集状態の関係を定量的に評価することができた。続いて、DEM-CFD 連成シミュレーションにより、粒子間相互作用力による粒子凝集・分散状態が微粒子スラリーのケーキろ過特性に及ぼす影響を検討した。ケーキ内の局所的な流速と空隙率から定義したろ過抵抗の指標により、凝集状態のろ過抵抗は分散状態よりもケーキ内でのばらつきは大きい、平均すると小さくなっていることがわかった。抵抗が小さい理想的なケーキは、空隙率が高く、ケーキ内の流れの偏りが小さいものと言われているが、本手法はそれを定量的に評価することができる。

以上より、各ろ過操作段階における粒子・流体挙動を明らかにし、微粒子スラリーのろ過設計をより精緻なものにするための有用な知見を与える本論文は、博士（工学）（同志社大学）の学位を授与するにふさわしいものであると認められる。

総合試験結果の要旨

2018年2月13日

論文題目： 微粒子スラリーのろ過設計に関する研究

学位申請者： 吉田 友一

審査委員：

主査：同志社大学大学院理工学研究科 教授 白川 善幸

副査：同志社大学 名誉教授 日高 重助

副査：同志社大学大学院理工学研究科 教授 土屋 活美

要 旨：

本論文提出者は、2007年3月に本学工学研究科工業化学専攻博士課程（前期課程）を修了し、2011年4月から2015年3月まで工学研究科工業化学専攻博士課程（後期課程）に在籍、2015年3月に退学（単位取得退学）している。本論文の主たる内容は、Chemical Engineering Transactions, Vol. 32, 2013, Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 48, No. 7, 2015, Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 48, No. 9, 2015に掲載され、十分な評価を受けている。また、本論文の内容の一部は、現在化学工学論文集に投稿中である。

2018年1月6日午後1時より約1時間半にわたって提出論文に関する学術講演会（博士論文公聴会）が開かれ、種々の質疑討論が行われたが、提出者の説明により十分な理解が得られた。さらに講演会終了後、審査委員により学位論文に関連した諸問題につき口頭試問を実施した結果、十分な学力を確認できた。提出者は、英語による論文発表ならびに国際会議での発表、語学試験にも合格しており、十分な語学能力を有すると認められる。よって、総合試験の結果は合格であると認める。

博士学位論文要旨

論文題目： 微粒子スラリーのろ過設計に関する研究
氏名： 吉田 友一

要旨：

ろ過は、粒子懸濁液（スラリー）をろ材を用いて捕捉粒子とろ液とに物理的に分離する操作であり、比較的シンプルな操作で高精度な分離、多量処理が可能であることから、食品、医薬品、化成品など固液混合物を扱うほとんどの産業分野において、液体の清澄化や粒子回収法として非常に重要な操作である。ろ過性能を表す指標としてろ過精度（分離粒子径）、ろ過抵抗（圧力損失）、粒子保持容量、ろ過寿命などが挙げられ、これらろ過性能に影響を及ぼす因子は、ろ材の特性、スラリーの性状、ろ過操作条件の3つに大別される。それぞれの因子をさらに細分化すると、ろ材の特性では、ろ材の種類や素材、構造、ろ過面積、細孔径などが挙げられる。スラリー性状では、粒子の大きさや濃度、分散媒の粘度、凝集・分散状態などが影響因子となる。ろ過操作条件としては、ろ過圧力やろ過速度、温度、流動状態などが挙げられる。ろ過操作を設計するとき、これらの因子によりどのようにスラリーが流動し、粒子がろ材あるいはケーキに捕捉され、その結果どのようなろ過性能を示すのかを予測しなければならない。

特に最近では、粉体を応用した製品の小型化や高性能化のため、粉体の微粒子化が進んでいる。これら微粒子は液相中で作製されることが多く、粒子回収手段として高精度かつ多量処理が可能な固液分離操作であるろ過の重要性はますます高まっている。その一方で、微粒子スラリーのろ過設計は困難を極める。その主な理由は、粒子が小さくなると、ろ過抵抗（ろ材抵抗や細孔閉塞による抵抗、ケーキ抵抗）が飛躍的に大きくなってしまいうためであり、如何にろ過抵抗を抑制するかが重要となる。しかしながら、微粒子になると静電気力や van der Waals 力といった粒子間相互作用の影響が顕著になり、そのろ過挙動を正確に把握することは非常に難しくなるため、しばしば設計精度を欠いてしまう。微粒子スラリーのろ過に要する推進力は大きく、性能予測を見誤った際のトラブルもより深刻になってしまいうことが多いため、微粒子スラリーの精緻なるろ過設計法の確立が切望されている。

そこで本論文では、ろ過設計プロセス：ろ材選定、スラリー調整、ろ過操作それぞれにおいて課題となっているろ材抵抗、スラリーのレオロジー特性、ケーキろ過抵抗の予測に関する検討を行い、微粒子スラリーのより精緻なるろ過設計法を提案する。ろ過において、粒子や流体は複雑な挙動を示すため、実験によりこれらの影響を詳細に把握することは困難である。そこで、粒子、流体挙動を微視的に観測できる数値シミュレーションによるアプローチを試みた。本論文は、第1章の序論に始まり、第2章、第3章においてろ材として広く用いられており、規則的でシンプルな網目構造を持つ織金網の流体抵抗則に関する検討を行った。第4章では、粒子の凝集・分散状態を評価するため、スラリーの凝集構造とレオロジー特性の関係について検討した。第5章では、ろ過過程におけるケーキ形成挙動、ケーキ構造とろ過抵抗の関係について調べた。第6章において、本論文の内容をまとめた。

まず、第2章ではろ材として広く用いられている織金網の幾何学特性が流体抵抗に及ぼす影響を明らかにするため、埋め込み境界法と格子ボルツマン法を組み合わせる織金網を通過する流体透過挙動シミュレーションを構築した。シミュレーション結果より、同じ目開きであっても金網の体積率が大きいほど、金網の抗力も大きくなることがわかった。平織と綾織では、平織金網の方が体積率は大きくなり、抗力も大きくなった。また、綾織金網の体積率は厚み方向に2つピークを持ち、1つ目のピークでの抵抗損失により、2つ目のピークにおける抗力は1つ目のものよ

り小さくなった。金網の体積率と単位体積あたりの表面積より定義した代表長さから金網の Re 数を求め、平織金網、綾織金網の抗力係数は体積率と Re 数の関数になると考え、圧力損失推算式を提案した。織金網の空気透過試験を行い、圧力損失測定結果を提案した式で整理すると、平織金網、綾織金網の抗力係数と体積率、 Re 数の関係は、それぞれ1本の曲線上にプロットされ、圧力損失推算式の妥当性が確認された。

つづいて第3章では、織金網の中でもワイヤーの密度が高く、高強度かつ小さな目開きを作ることができる畳織金網の網目構造が流体抵抗に及ぼす影響を明らかにした。まず、網目構造が十分に解明されていない綾畳織金網について幾何学モデルを提案し、目開き推算式を導出した。綾畳織金網は3種類の目開きを持っていることがわかり、それぞれの目開き推算式を提案し、そのうち最も小さい目開きを代表目開きとした。次に、第2章で構築したシミュレーションを用いて畳織金網を通過する流体透過挙動シミュレーションを行った。シミュレーション結果より、畳織金網の抗力は体積率が大きくなる内部目開きにおいて大きくなり、織金網の厚み方向に対して平畳織金網の抗力は1つのピークを、綾畳織金網の抗力は3つのピークを示した。さらに、綾畳織金網の中央における抗力のピークは、体積率だけでなく内部の流路のねじれによっても変化することがわかった。この綾畳織金網の内部の局所的なねじれ率は、提案した目開き計算モデルから推算できた。畳織金網の流路は複雑であり、同じく複雑な流路を持つ粒子充填層の流体抵抗を表す Kozeny-Carman の式を応用し、畳織金網の圧力損失推算式を導出した。流路の形状に関するパラメータである Kozeny 定数は、綾畳織金網の内部の局所的なねじれ率と相関があった。

第4章では、微粒子スラリーの凝集構造とレオロジー特性の関係を解明するため、離散要素法による粒子計算と直接数値シミュレーションによる流体計算を連成して、せん断流れ場におけるスラリー挙動シミュレーションを構築した。粒子が凝集状態にあるスラリーでは、せん断速度の増加にともない凝集体が崩壊するため、粘度は低下し、非ニュートン挙動を示した。この凝集体構造の変化にともなう粘度変化は、粒子により流動が妨げられる流体領域、すなわち不動水の存在によるものと考えられる。速度勾配がせん断速度の2分の1以下となる領域を不動水として、この不動水を固体とみなした見かけの固体濃度を求めることで、不動水がスラリー粘度に及ぼす影響を評価した。予め初期配置した鎖状、塊状の凝集体をもつスラリーにおいて、それぞれ異なる見かけの固体濃度を示し、かつスラリー粘度との間に相関が見られ、見かけの固体濃度により凝集構造を定量的に評価することができた。

第5章では、粒子間相互作用力による粒子凝集・分散状態が微粒子スラリーのケーキろ過特性に及ぼす影響を明らかにするため、離散要素法による粒子計算と数値流体力学による流体計算を連成したケーキろ過シミュレーションを構築した。シミュレーションより得られたケーキ形成挙動から、ろ材真上の空隙率が0.5、0.6程度まで下がらないとろ過速度の低下は起きていないことがわかった。実際には、ろ材の細孔閉塞等による抵抗でろ過速度は低下すると考えられるが、この結果は粒子がろ材表面を4、5割程度覆っても、ケーキとしてはほとんど抵抗にならないということを示唆している。また、ケーキ内の流体抵抗について、凝集条件は分散条件に比べてばらつきは大きいものの、平均的には小さくなっていることがわかった。これは、凝集条件の方がケーキの空隙率が高いことと、ケーキ内部で抵抗が小さいところを選択的に流体が透過しているためと考えられる。この流れの偏りも少ない方がより抵抗は小さくなると考えられ、抵抗の低い理想的なケーキは、空隙率が高く、かつろ材面内方向の構造的なばらつきが小さいケーキであるということが言える。

以上のように、本研究ではろ材への流体透過挙動、スラリーのレオロジー挙動、ケーキろ過挙動について数値シミュレーションによる微視的な観察、定量的な評価を行い、各ろ過操作段階における粒子、流体挙動を明らかにすることで、微粒子スラリーのろ過設計をより精緻なものにするための有用な知見を与える。