Fick の法則を適用したりすることは既に過去のものである。材料内に水を保有する力、水の状態を追究し、その上にたつ水あるいは蒸気の移動機構を明らかにすると共に熱量移動および相変換に用いられる熱量から温度分布を明らかにしなければならない。各種材料についてのこれらの特性をまとめると別表に示すようになる。

乾燥工学の究極の目的は材料内における熱・物質・運動量の同時移動現象を明らかにする所にあるが、これの

基礎となる移動のポテンシャルを定め、物理的意義が明らかに定義されうる諸物性値の乾燥中における変化を求めることこそがその根本であり、これらが薄弱な状態のまま数学的解を求めることは本質ではあるまい。

化学工学の目的は現象の解析とそれに基づく新しい手法の開発にあり、乾燥もまたその一部門であることを申し述べ今後の発展を期待したい。

粒 子 層 の 乾 燥 機 構*

大 谷 茂 盛**

乾燥機構を総括して記述したものとしては、「乾燥機構に関する最近の研究」¹⁾、「乾燥と伝熱」²⁾および「乾燥理論の進歩」³⁾などがみられる。ここでは粒子層を対象とし、その乾燥機構を層内部と表面とにおける移動機構において論ずることにする。さらに機構を解析するにあたって、その信頼性を左右する基礎的な諸値および係数などを、乾燥物性として項を別にして述べ、また今後の問題点にもふれたい。

1. 湿った粒子層における移動現象概説

乾燥は熱と物質の同時移動現象に属するが、粒子層についてその内容を分類すると、図1に示したごとく次の5つになる。①境界層を通して熱風より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発生した蒸気の層内部および境界層を通して外界への蒸気移動現象、④粒子層の温度上昇に必要な伝熱現象、⑤粒子層内部から蒸発面への液状水の移動現象などである^{4,5)}。

乾燥条件一定のもとで、湿った粒子層を乾燥した場合の乾燥特性曲線の典型的な例を図2に示した。亀井およびその共同研究者は多くの種類の材料について乾燥特性曲線を測定し、昭和10年前後の工業化学雑誌に発表している。特性曲線は材料の種類および操作条件などによって異なり、いろいろな型をとり、またC点で示される限界含水率を境として、その前後では移動機構が異なる。乾燥機構解析の一つの目的はこの特性曲線を予知す

ることであろう。

2. 粒子層内における移動機構

2・1 層内における水の状態とその起動力

絶乾の場合を除き、粒子層内にはなんらかの状態の水を保有している。この水は free water の性状に近いものと、物理化学的な概念によって説明されるいわゆる bound water とに分けられる。前者の蒸気圧および粘度などは free water のそれらとほぼ等しく、後者は一般に free water にくらべ蒸気圧は小さく、粘度は大きい。

桐柴^{3,6)}は各種物質内に存在する水を対象材料別、すなわち非吸着性、ゲル状、吸着性、細胞質、液滴、液膜および凍結材料などに分類し、それぞれの中に存在する水の状態につき説明を行なっている。ここでは非吸着性の粒子層内における水について、suction pressure の概念と関連して、その状態を乾燥物性4・2の項で後述する。

前節⑤の移動現象は乾燥の分野以外に、汙過、脱水、採鉱・油学、土壌・土質工学、冶金学、保温・保冷および衛生工学など、いろいろの分野で取り扱われている。各分野における取扱いを共通的な立場から数式化する場合、起動力としては従来(a)水圧勾配 $\Delta p/\Delta x$ 、(b)含水率勾配 $\Delta p/\Delta x$ 、(c) suction pressure の勾配 $\Delta p/\Delta x$ の3通りが考えられてきた。そして層内液状水の起動力として何をとって取り扱うのが理論的であり、また理解しやすいかが論ぜられたが、この三者の相互関係については、モデルによる解説と実験とにより一応明らかにされた⁷⁾。(a)は汙過などのように層内の間隙全部が液が満ちて流れる場合にとられる手法であるが、気・液・固系

* 昭和46年12月16日受理

** Shigemori Ohtani (正会員) 東北大学工学部 化学工学科

からなる湿った粒子層における場合、一般に水は funicular 状態で存在しており、従来水圧という概念がつかみにくく、直接簡単に測定可能な (b) 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から乾燥の分野で行われてきた。しかし粒子層のような不均質材料内の水分移動に (b) を直接起動力にとる解析の手法に対しては疑問が残る、すでに理論的でないことが指摘されている⁷⁻¹⁰。(c) を起動力にとり毛細管理論にもとづいて、層内の液状水移動を考察した報告は古くから発表されており、定性的には良く現象を説明している^{8,11,12}。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るが⁷、粉粒子層の場合は概念のつかみやすい suction pressure p で代用しており、これについての定量的な取扱いは後述する。

2.2 層内における液状水移動の機構

粒子層内の水は液状および蒸気状態で移動する2つの形態が考えられ、その割合が含水率 φ がいくらのときにどの位になっているかについては、桐柴、林ら¹³などの研究がある。粒子層内の液として希薄な塩類水溶液を用い、乾燥過程における層内水分分布と塩濃度分布を測定した結果、砂および球形ガラス粒子層では $\varphi=5\sim6\%$ 以上では水は液状で、 $3\sim4\%$ 以下では蒸気状態で移動することを見いだしている。この境目の含水率は $p-\varphi$ 曲線 (図10) の pendular 状態の ⊙ 点の含水率 (飽和度 S で表わせば約 10%) にほぼ一致する。

恒率乾燥期間中は粒子層では液状水のみの移動が行なわれている。起動力に $d\varphi/dx$ をとり、粒子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 (その周壁には小孔があいている) の束よりなるモデルでおきかえる^{14,15}。このモデルは Krischer によって最初に提案され、その後このモデルをもとにして、層内液状水の移動機構の解析が進められた¹⁵⁻¹⁹。図3において毛細管力と重力と摩擦力の間のつり合いを考え、流動抵抗に Poiseuille の法則を適用すると

$$\frac{dp_x}{dx} dx = \frac{\rho_w g}{g_c} \sin \theta dx + \frac{8\mu u}{g_c r_{cx}^2} dx \quad (1)$$

定常状態 (温度一定、蒸発量一定つまり恒率乾燥期間) における層内液状水の移動速度 G_w は図4を参照して整理すると

$$G_w = \frac{\alpha g_c \rho_w}{8\mu} \left[\int_{p_{max}}^{p_s} \left(\frac{2\sigma}{p} \right)^2 \frac{d\varphi_w}{dp} dp \right] \left\{ -\frac{\rho_w g}{g_c} \sin \theta + \frac{dp_x}{dx} \right\} \quad (2)$$

粒子層の $p-\varphi$ 曲線が求められており、係数 α の値がわかっておれば、層内を移動する水の量 G_w が測定されるとき、そのときの x 方向の水分分布を知ることができる。

図1 粒子層における熱と物質の移動

図2 乾燥特性曲線

図3 いろいろの径よりなる毛細管束

図4 毛細管分布曲線

図6 式(6)右辺の内容説明図

図5 温度勾配下における水分分布の実測値と理論値の比較

2.3 温度勾配下における層内の水分移動現象

湿った物質に温度勾配をあたえると、高温域から低温域への水分の移動がある。熱伝導を伴う場合の水分分布

に関する実験は古くから比較的多いが、これを定量的に解析した例はきわめて少ない。この場合層内に形成される水分分布は温度およびその勾配、含水率および粒子の性状などの影響をうけ、空気・水を含む複雑な粒子間の間隙を水分は蒸気状および液状で移動するので、その数的な取扱いは容易でない。

層内における蒸気状水分の移動速度 G_D は、各点における温度に相当した水蒸気分圧 P_s の勾配によるとして、Stefan の一方拡散の式を用いて表わすと

$$G_D = -\frac{\beta D}{RT} (\varepsilon - \varphi_v) \frac{P}{P - P_s} \frac{dP_s}{dt} \frac{dt}{dx} \quad (3)$$

温度勾配下における水平粒子層内の液状水移動速度 G_w は¹⁷⁾

$$G_w = \frac{ag_v \rho_w}{8\mu} \left[\int_{\max}^{p_s} \left(\frac{2\sigma}{p} \right)^2 \frac{d\varphi_v}{dp} dp \right] \left\{ \frac{\sigma}{\sigma_0} \left(\frac{dp}{d\varphi_v} \right)_{t_0} \frac{d\varphi_v}{dx} + \frac{p(\varphi_v, t_0)}{\sigma_0} \frac{d\sigma}{dt} \frac{dt}{dx} \right\} \quad (4)$$

粒子層をつんで外部へ水分が逃げないようにした場合は

$$G_D + G_w = 0 \quad (5)$$

この定量的な解析は湿った粒子層の有効熱伝導度を、いわゆる比較法などによる定常状態で測定する場合などに関連し

て重要である。

式(3)、(4)、(5)を $d\varphi_v/dx$ 、 dt/dx の項で整理して書きかえると、結局温度勾配による含水率勾配は次式の

ようになる¹⁷⁾。

$$\frac{d\varphi_0}{dt} = \frac{\beta D}{RT} \frac{P}{P - P_s} \frac{dP_s}{dt} \frac{\sigma_0}{\sigma} \cdot \frac{(\varepsilon - \varphi_0) \left(\frac{d\varphi_0}{dp} \right)_{t_0}}{\frac{g_c \rho_w}{\mu} \cdot \frac{\alpha \int_{p_{\max}}^{p_s} \left(\frac{2\sigma}{p} \right)^2 \frac{d\varphi_0}{dp} dp}{8}} - \frac{d\sigma}{\sigma} \cdot p(\varphi_0, t_0) \left(\frac{d\varphi_0}{dp} \right)_{t_0} \quad (6)$$

すなわち温度分布が実測され、試料粒子層の平均含水率 φ_m がわかれば、式(6)を数値計算することにより水分分布を求めることができる。その一例を図5に示した。式(6)の右辺第1項は動的平衡の項、第2項は静的平衡の項と名づけられ、本式のもつ物理的意味が明らかにされた(図6)¹⁷⁾。

2・4 減率乾燥期間における熱と物質の同時移動

古くは $\Delta\varphi/\Delta x$ を起動力の形にとり、Fick の法則にもとづいて水分移動が論ぜられ、多くの解がみちびかれている²⁰⁻³⁰⁾。基礎式に各種の初期条件および境界条件を入れて解くこの手法は熱伝導における温度分布を求める場合と数学的には同じであり、層内の水分が蒸気状態で移動するのか、液状で移動するのかに無関係で、粒子層における乾燥機構の本質にはふれていないとみるべきであろう。

近年、減率乾燥過程を熱と物質の同時移動として取り扱い³¹⁻³⁷⁾、さらに最近の知見をもとに減率乾燥第1、第2段の定義が明らかにされ³⁸⁾、減率期間における乾燥の機構が確立されつつある。

減率期間に入れば、粒子層表面には自由水は存在せず、内部で蒸発した蒸気状の水分の移動が起こる。層内部で蒸発が起こるとき、蒸発帯を仮定する場合と蒸発面を仮定する場合とがある。いずれにしても、蒸発部の深さと乾燥速度の関係を求めてみると、通常の乾燥条件では、蒸発面がごくわずかも後退すると、乾燥速度の減少が顕著にみとめられる。恒率期間中は湿球温度で一定の状態にあった粒子層が減率期間に入ると、時間とともにまた場所的にも温度が上昇する。図7にアクリル樹脂球層が乾燥して行く過程の温度分布を示した³⁶⁾。

桐柴³⁾は粒子層を乾燥圏と湿り圏に分け、その蒸発面の後退について図8のモデルにより解説している。すなわち、境界層をととして流入する熱量 q は乾燥圏の温度上昇による顕熱を無視すれば

$$q = (t_a - t_s) / \left(\frac{1}{h} + \frac{s}{\lambda} \right) \quad (7)$$

一方、蒸気状水分は乾燥圏および境界層を経て熱風中に移動するから

$$G = \left(\frac{p_s}{RT_s} - \frac{p_a}{RT_a} \right) / \left(\frac{1}{k} + \frac{s}{\beta_e D} \right) \quad (8)$$

r_s を t_s における水の蒸発潜熱、 p_s を t_s における飽和蒸気圧とみなし、また s が十分大きくなり材料内部の抵抗

図7 アクリル樹脂球層の乾燥速度と温度分布

図8 減率乾燥機構のモデル

にくらべ、境界層の抵抗が無視できるとき、 t_s を t_p とすると

$$\frac{p_p}{T_p} - \frac{p_a}{T_a} = (t_a - t_p) \frac{\lambda R}{r_p \beta_e D} \quad (9)$$

この t_p は t_s の漸近値を示すもので、これを桐柴、林ら³⁵⁾は漸近到達温度と名づけた。Nissan ら³²⁻³⁴⁾はこれを擬湿球温度と呼び、ほぼ同様の取扱いを行なっている。 t_p は粒子層の物性と乾燥条件によって決まる値であり、これをもとにして粒子層内の温度分布が計算される³⁶⁾。

桐柴、林ら^{35,37)}は粒体および粉体材料層について詳細なる実験を行ない減率乾燥速度を解析し、また桐柴、岡崎³⁹⁾は毛管水を保有する材料の減率乾燥期間における

図9 不連続湧出源上の境界層モデル (線型速度)

水分存在状態の一つのモデルを提案し、材料内の水分分布を解析している。杉山、鬼頭、架谷ら⁴⁰⁾は高温輻射炉により多孔質固体の乾燥を行ない、総括比熱の概念を用いて試料内温度分布を解析し、それが固体の2段階熱分解反応に類似していることを述べている。熱と物質の同時移動現象の立場からとらえられた減率乾燥期間の機構究明は非等温系における固・気系反応の解析⁴¹⁾などにその展開が期待される。

3. 粒子層表面における移動機構

3.1 恒率乾燥速度

対流乾燥における粒子層の恒率期間では、境界層をとおして流入する熱量(図1の①)のほとんどは、層表面における水分蒸発に消費される。そして層内の水は液状で表面にはこぼれ、粒子層の温度はその乾燥条件における湿球温度 t_w にはほぼひとしく一定に保たれる。この場合における熱伝達係数を h 、物質移動係数を k とすれば恒率乾燥速度 G_0 は

$$G_0 = h(t_a - t_w)/r_w = k(H_w - H_a) \doteq \frac{h}{C_H}(H_w - H_a) \quad (10)$$

で表わされ、自由水表面よりの蒸発速度にはほぼ等しい⁽⁴²⁾。

恒率期間においては層内部の水が比較的容易に表面に供給され、乾燥速度はもっぱら表面蒸発に支配される。「この場合には材料表面は遍く水分をもって潤されている」というSherwood⁽⁴³⁾の説明は、粘土粉体層のように収縮水の蒸発下ではいえるが、非圧縮性の一般の粒子層では恒率乾燥期において、図2B→Cに示すごとく粒子層の含水率が減少すると、層表面は水で濡れている部分と乾いた部分とが混在した状態にある(図1参照)。

にもかかわらずこの期間における乾燥速度が自由水表面よりの蒸発速度にはほぼ等しく一定であるのはなぜであろうか。

3.2 不連続湧出源からの物質移動

上述の疑問に答えて、鈴木、前田、大谷らは不連続湧出源よりの移動現象について、理論と実験の両面より解析を行ない、恒率乾燥の機構を考察している。

不連続に分布している水面と熱風との間の物質移動現象に関し、表面の境界層について(a)静止境膜では二次元および三次元、(b)流れをともなう場合には境膜内速度分布をピストン流れおよび図9に示すような直線型分布など種々のモデルを設定し、濡れ面積比 ϕ とみかけの物質移動係数 k (k_0 は自由水表面における物質移動係数)との関係を理論的に解析した^(42,44)。その結果、この関係を支配するパラメータはモデルの選び方によって異なり、(a)静止した境膜のモデルでは境膜の厚さ δ と粒径 d との比 δ/d 、(b)流れを伴った境膜モデルでは水面の数 N や $u\delta^2/Dd$ であることがわかった。また通常の乾燥条件では、これらのパラメータの値は十分大きく、粒子層表面に露出した水の面積が減少しても、 k はほとんど変化しないことが示され、粒子層の乾燥において恒率乾燥の起こる一つの原因と考えられる。

そして、上述の理論を次の全く異なった二つの実験によってたしかめている⁽⁴⁵⁻⁴⁷⁾。一つはフェリシアンイオンのカソード上での還元反応を利用した電解実験によった。電極にはニッケル板を用い、その表面に絶縁塗料を埋め込み、不連続面を作り、チャンネル中の流体の Re 数をかえ、それぞれにおける拡散律速の限界電流を測定し、 k を求めている^(45,46)。もう一つの実験は蒸発面にガラス板をはり渡し、濡れ面のくりかえし数および有効面積比 ϕ をかえた方法および粒子層に適当な suction pressure をつけ、濡れ面積比をかえた方法などにより、ダクト中の熱風の温度および Re 数をかえて、不連続湧出源よりの熱および物質移動について測定を行なっている⁽⁴⁷⁾。いずれの場合も理論的解析と比較的よく一致している。

3.3 層表面における熱と物質移動

物質移動を伴う場合の材料表面における熱伝達係数 h の値がはっきり定まれば、恒率乾燥速度 G_0 は式(10)により計算できるわけであり、この h の挙動が本問題における主力となる。これについては基礎物性の項で若干ふれる。ここでは乾燥過程における熱・物質同時移動の立場から、恒率乾燥が行なわれるもう一つの理由を考察している鈴木ら⁽⁴⁸⁾の報告を紹介する。

粒子表面の濡れ面積が減少しても、 k はほとんど変わらないことを述べたが、もし k の値がわずかに減少したとしても、この期間中は伝熱係数一定と近似することができるので、表面温度が上昇して蒸気圧が増加する結果、蒸発速度の減少率は k の減少率より小さいことがわかった。この結果を支配するパラメータは液の物性によって決定される値、すなわち湿球温度線の勾配と飽和蒸気圧線の勾配の比であり、水のようにこの値の小さい場合はこの温度上昇効果は著しい。つまり、 k の減少は温度のわずかな上昇によって補償されてしまい、蒸発速度はほ

図 10 無次元化した capillary suction pressure 対液飽和度の関係

とんど変化しない。これが粒子層の乾燥において、水のメニスカスの占める面積が減少しても、恒率乾燥が継続するもう一つの理由になるとと思われる。

4. 乾燥における基礎物性

乾燥機構を明らかにするためには、なるべく現象に立脚した合理的なモデルによる解析が期待されるわけであるが、その際使用される基礎的な諸値および係数などは十分信頼性のあるものであることが要求される。乾燥における基礎物性としては多くのものが考えられるが、ここでは紙面の都合上、数種をとりあげて述べる。

4.1 平衡含水率

図2の乾燥特性曲線に示したE点が平衡含水率であり、この平衡含水率 ϕ_e は空気の温度、湿度に対応したそれぞれの材料特有の値を示す。文献⁽⁹⁾などには多くの測定結果が表約されている。 ϕ_e の測定は長時間を要する地味な仕事であるが、各種材料の諸条件下におけるデータの集積が望まれる。

4.2 Suction pressure

層内液状水の起動力として用いられる suction pressure は capillary suction pressure と osmotic suction pressure の二つに大別される。前者は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り、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。粒子が細くなるにつれて後者が影響力をもつようになり、 1μ 前後の細かい、乾燥に際して収縮を伴うような粉粒子層（たとえば粘土・水系）に対しては osmotic suction pressure が支配的に働く。

Capillary suction pressure p については古くより含水率との関係が実測されていたが^(11,50,51)、その後 p におよぼす温度の影響、減水および増水時における履歴現象、

任意の含水率の粒子層を形づくった場合の $p-\phi$ 曲線の挙動などについてある程度明らかにされた⁽⁵²⁾。さらに各種の粒子層における $p-\phi$ 曲線を図10に示したように、ほぼ一本の曲線でまとめ、無次元化した suction pressure と液飽和度で表わした含水率との関係を実験式で示している⁽⁵³⁾。

図中③点は飽和の含水率にある状態であり、③④間は層内には capillary water がみちており、粒子層表面における水の凹面の曲率が増加し、 p が増大する部分である。④点で示される suction pressure になると層内に空気が入り込み、比較的大きな間隙から水が抜け、その後含水率の減少とともに p が漸次増す。④⑤間における水は funicular 状態で存在し、⑤点以後においては水のつながりは切れ、粒子の接点に残るいわゆる pendular water として存在する。水のつながりが切れると層内の液状水は capillary suction pressure では移動ができなくなり、⑤点以後は蒸気状で移動する。粒子表面における分子層単位の水を除けば上述の層内の水の蒸気圧および粘度などは free water のそれと等しいとみなせる。

Osmotic suction pressure は物理化学的な概念によって説明されており、これについては2,3の測定^(5,54-56)がみられるが、ここでは省略する。これにおよぼす諸因子の影響およびその測定方法の確立などは今後に残された問題である。

4.3 水分移動係数

Fick の法則にもとづいて解析する場合に拡散係数と同様の形で入ってくる係数である。水分移動係数 D は含水率の関数であり、粉粒子層のような場合は ϕ によって非常に大きく変化する。粒子層についての D に物理的意味を最初に与えたのは Krischer ら⁽¹⁸⁾であり、その後筆者らは $p-\phi$ 曲線をもとにして D の含水率依存性をより具体的に説明している⁽¹⁵⁾。若林^(57,58)は微粒子層（粘

図 11 粒子層の径路係数と含水率の関係

土類)の D を実測し、限界含水率近傍においてそれが極大値をとると述べている。

D を用いての取扱いは、熱と物質の同時移動に、さらに材料の性状も関係する複雑な移動現象を単純化し、物質拡散のみにおきかえたものであり、粒子層のような不均質材料の乾燥機構究明の立場からみると、一応ある限界を感じとることができる。

4・4 液状水移動の径路係数

式(1)を誘導する際に想定したモデルは円直管の毛細管の束からなっているとしたが、実際の粒子層内の水はジグザグの通路を曲りくねって通る。また流路断面は円形でなく、形の不規則な拡大、縮小部が互いに連絡されており、毛細管径としていわゆる相当直径を用いても、suction pressureを表わす相当径と流動にあずかる相当径とが、はたして同意義的に取り扱えるかどうか疑問が残る。さらに粒子間に funicular 状態で存在する水の性状は複雑であり、粒子の性状および含水率などによって影響されると思われる。

これらのための総括の補正項として、 α を式(1)に導入したが¹⁸⁾、この値は1より小さい値をとる。 $1/\alpha$ は径路係数と名づけられたが、従来 $1/\alpha$ に相当するものを屈曲係数あるいはジグザグ係数と呼び、粒子層の種類によってことなる値をとるが、含水率に関係なく一定値を与えていた¹⁹⁾。その後、信頼性のある測定が行われた結果、たとえば図11に示すように¹⁸⁾、 $1/\alpha$ は含水率 ϕ の関数であり、 ϕ が小さくなるにつれて、ほぼ指数関数的に増大する。飽和に近い含水率をもっている粒子層における $1/\alpha$ はいずれも約1.5前後の値を示すが、これは非圧縮性の材料層の戸過においてよく適用される Kozeny-Carman の式の定数 $C_K=5$ の内容とよく一致している。

Newitt ら⁵⁰⁾は乾燥過程における粒子層内の液状水の移動について、Kozeny-Carman の式を用いて解析しているが、式中の Kozeny 定数を含水率に関係なく、 $C_K=5$ 一定としているところに疑問がある。

4・5 水蒸気移動の屈曲係数

式(3)中の β は多孔性物質中の間隙内を蒸気が拡散する場合の拡散係数 D に対する補正係数である。したがって β の値は大気中を拡散する場合は1であり、多孔性物質内を拡散する場合は1より小さい値をとる。 $1/\beta$ がいわゆる水蒸気拡散に関する屈曲係数であり、これについては文献など⁵⁹⁻⁶¹⁾に解説されており、また最近乾燥分野以外でも研究がなされつつあるが、ここでは省略する。

4・6 湿った粒子層の有効熱伝導度

静止系粒子充填層の有効熱伝導度については古くより多くの研究があり、その推算も相当精度良くできる⁶²⁾。ところが乾燥で取扱う粒子層は固体・液体・気体の三相系であり、2・3で前述したように複雑な移動現象である。従来湿った物質内における水分移動の機構が量的に明確にされていないため、水分を含む物質の熱伝導度の測定はいろいろの工夫がほどこされてきた。

棚沢^{63,64)}は試料内に比較的短い周期、小振幅の温度波を送り、ある2点間の波の位相差より求められる、いわゆる周期法による温度伝播率 κ の精度ある測定法を考案した。これによると試料内の各点の平均温度は均一に保たれており、水分移動を防止した状態で、鋳物用砂、ガラス粒、その他数々の粒子層の熱伝導度を測定し(湿った試料粒子層の比熱は別に求めている)、含水率の影響を考察している。周期法によるこの種の測定法を確立したのは、この棚沢の報文がおそらく初めてであろう。木村⁶⁵⁾は粒子層を真鍮製の円筒内に形づくり、中心線上

に熱電対をうめ、外套に冷却水および温水を切換えて流し、 κ の値を測定した。そして水およびヒマシ油で湿した粒子充填層の有効熱伝導度を求め、簡単な実験式を導き棚沢らの値と比較している。このほかに棒状熱源⁶⁸⁾、または平面熱源から出る過渡的な熱流を応用し、湿った砂および保温材などの κ を求め、熱伝導度におよぼす水分の影響が検討されているが、これらは主として常温付近の測定値であり、水蒸気拡散による潜熱移動が無視できる範囲のものである。

その影響を考慮に入れた有効熱伝導度 λ_e の推算に関しては、古く Krischer ら^{68,69)} および Nissan ら⁷⁰⁾ の並列・直列型の組合せモデルによるもの、また最近では岡崎ら^{71,72)} の精詳なる推算の研究が進められている。2・3項で解析したごとく温度勾配下における粒子層内の水分分布が定量的に把握できたので、著者ら^{73,74)} は熱伝導度測定において比較的精度が高いとされている比較法により、種々の湿った粒子層について λ_e を求めた。その一例を図12に示した。 λ_e は含液率によってことなるほか、温度の影響を大きくうけることがわかる。

適切なモデルによる推算が期待されると同時に、精度ある λ_e の値が集積され、それにおよぼす材料の性状、含液率および温度などの影響を適確に把握することは、乾燥の分野における必要な課題であろうと思う。

4・7 物質移動を伴う場合の熱伝達係数

乾燥における熱伝達係数は物質移動をとまなう場合に相当し、単純な伝熱の場合における熱伝達係数と相違があるか否かは興味をもたれるところである。

二次元層流境界層理論からは物質移動のある場合の熱伝達係数 h は、それがないときより小さい値を示す^{75,76)}。しかし実際の流れにおける多くの測定値は、一般に伝熱のみの場合に提出されている式に比べて大きな値を与えている。一方全く逆な測定結果を報告している文献⁷⁷⁾もある。

林⁷⁸⁾は粉粒子層の乾燥過程における熱伝達係数の変化を追求し、ガスの質量速度を G_a [kg/m²・h] で表わせば、恒率乾燥期間中はほぼ一定で

$$h = 0.013 G_a^{0.8} \quad 2,500 < G_a < 15,000 \quad (11)$$

であり、減率期間に入ると減少し、減率期間の末期では再び一定となる。この末期における一定値は伝熱のみ起こっている場合の h と近似的に等しいと考えている。この外、乾燥過程における h については多くの実験式⁷⁹⁾が示されており、また最近の研究の動向も紹介¹⁾されているが、ここでは省略する。

いずれにしても、熱伝達係数におよぼす物質移動の影響については、今後より精度ある実験のもとに、この分野での研究の進歩がまたれる。

図12 湿った粒子層の有効熱伝導度の一例

4・8 限界含水率

乾燥装置の設計を行なったり、最適運転条件を定めたりする時には、さまざまな乾燥条件下における材料の乾燥速度を知る必要がある。乾燥特性曲線は実際の場合と同じ条件で乾燥実験を行なうと求まるが、この方法は時間と経費がかかる上に、実験を行なわなかった条件に対しては何の知見も得られない欠点がある。

乾燥特性曲線(図2)上の限界含水率 $\varphi_{crit.}$ は恒率乾燥から減率乾燥に移行するときの粒子層平均含水率

$$\varphi_{crit.} = \frac{1}{L} \int_0^L \varphi dx \quad (12)$$

で表わされる。限界含水率時の表面含水率が規定でき、そのときの層内の水分分布曲線がわかれば、もちろんこの値は計算できる。

恒率および減率期間の乾燥機構が明らかにされ、この $\varphi_{crit.}$ が推定できれば、装置の設計および操作上きわめて好都合である。鈴木ら⁸⁰⁾は限界含水率の一つの推定法を提案した。粒子層内の水分移動機構が既知の時には計算のみによって、不明のときには少数の実験データから $\varphi_{crit.}$ を推定することができる。

限界含水率に関する研究は乾燥の分野ではきわめて重要であるが、非常におくれている部分であり、今後の研究の進歩を期待したい。

4・9 乾燥収縮

粒状物質の乾燥においては、篩分けできる程度の比較的大きな粒径の粒子層たとえば40 μ 以上の砂の層などでは乾燥収縮がないが、粘土のような1 μ 前後の粒子層は明らかに乾燥収縮を起こす。

乾燥過程における収縮の状態は一意的なものでなく、物質によって異なり、また材料の場所による差もあってきわめて複雑であり、2, 3の研究^{81, 82)}がみられる。亀井、桐栄⁸³⁾は収縮特性の全く異なる材料、すなわち木材、皮革、パルプおよび粘土の4種類について、それぞれ収縮割合対含水率の関係を求め、これと乾燥特性曲線

とを対照して乾燥の機構を検討している。

乾燥収縮の現象と亀裂の機構⁸⁴⁾、材料内水分移動および水分分布などを関連づけて、乾燥の機構を解析することは、今後、成型品の乾燥能力向上の観点から興味ある問題であらうし、また必要なことであると思う。

引用文献

- 1) 桐栄良三：化学工学，31，857（昭42）
- 2) 大谷茂盛：機械の研究，21，129（昭44）
- 3) 桐栄良三：最近の化学工学，203（昭43）
- 4) 大谷茂盛：化学工学北陸大会特別講演要旨集（昭41-10月）p.111
- 5) 大谷茂盛：化学増刊（粉体の物性と工学），31，197（昭42-11月）
- 6) 桐栄良三：乾燥に関するシンポジウム要旨集，（昭46-6月）p.1
- 7) 大谷茂盛，鈴木睦，前田四郎：化学工学，30，1130（昭41）
- 8) N. H. Ceaglske, O. A. Hougen: *Ind. Eng. Chem.*, 29, 805 (1937)
- 9) 大谷茂盛：化学工学第2回総合シンポジウム前編集（昭38-11月）p.12
- 10) 桐栄良三，林信也：化学工学，25，675（昭36）
- 11) W. B. Haines: *J. Agr. Sci.*, 17, 264 (1927)
- 12) E. W. Comings, T. K. Sherwood: *Ind. Eng. Chem.*, 28, 1092 (1934)
- 13) 桐栄良三，林信也，沢田周三，藤谷義：化学工学，29，522（昭40）
- 14) O. Krischer: *Z. VDI*, 82, 373 (1938)
- 15) 大谷茂盛，前田四郎：化学工学，28，362（昭39）
- 16) O. Krischer, O. H. Ronalter: *VDI-Forsch-heft*, 11, 402 (1940)
- 17) 大谷茂盛，鈴木睦，前田四郎：化学工学，28，642（昭39）
- 18) 大谷茂盛，前田四郎：化学工学，31，463（昭42）
- 19) O. Krischer, K. Mahler: *VDI-Forsch-heft*, 25, 473 (1959)
- 20) T. K. Sherwood: *Ind. Eng. Chem.*, 21, 12あるいは976 (1927)
- 21) 亀井三郎：工業化学，40，560（昭12）
- 22) T. K. Sherwood: *Ind. Eng. Chem.*, 24, 307 (1932)
- 23) E. R. Gilliland, T. K. Sherwood: *Ind. Eng. Chem.*, 25, 1134 (1933)
- 24) D. A. DeVries, A. J. Peck: *Austr. J. Phys.*, 11, 409 (1958)
- 25) A. B. Newman: *Trans. Amer. Inst. Chem. Eng.*, 27, 203 (1931)
- 26) A. V. Lykov: *Experi. und Theoretische Grundlagen der Trocknung* (1955)
- 27) 桐栄良三，林信也，池元進，永井勲：化学工学第28年会要旨集，（昭38-4月）p.39
- 28) 八田四郎次：化学工学概論（共立，昭34）p.265
- 29) T. Tsang: *Ind. Eng. Chem.*, 52, 707 (1960)
- 30) 若林嘉一郎：化学工学，28，102（昭39）
- 31) O. Krischer: *VDI-Forsch.-heft*, 415, 1 (1942)
- 32) A. H. Nissan, W. G. Kaye, J. R. Bell: *A. I. Ch. E. J.*, 5, 103 (1959)
- 33) A. H. Nissan, J. R. Bell: *A. I. Ch. E. J.*, 5, 344 (1959)
- 34) A. H. Nissan, H. H. George, T. V. Bolles: *A. I. Ch. E. J.*, 6, 496 (1960)
- 35) 桐栄良三，林信也，長谷川淳，甲斐貞，田中資俊：化学工学，28，458（昭39）
- 36) 桐栄良三，林信也，沢田周三，藤谷義：化学工学，29，25（昭40）
- 37) 桐栄良三，林信也，藤谷義：化学工学，29，771（昭40）
- 38) 桐栄良三：化学工学北陸大会乾燥工学シンポジウム要旨集（昭44-11月）p.129
- 39) 桐栄良三，岡崎守男：Preprint of 62nd National Meeting of A. I. Ch. E. (1967)
- 40) 杉山幸男，鬼頭正和，架谷昌信，森下正：化学工学，31，1081（和40）
- 41) 石田健：東京工業大学博士学位論文（昭44-3月）
- 42) 鈴木睦，大谷茂盛：化学工学第31年会要旨集（昭41-4月）p.151
- 43) T. K. Sherwood: *Ind. Eng. Chem.*, 21, 976 (1929)
- 44) 鈴木睦，前田四郎：*Jour. Chem. Eng. Japan*, 1, 26 (1968)
- 45) 遠藤敦，鈴木睦，大谷茂盛：化学工学，34，299（昭45）
- 46) 遠藤敦，鈴木睦，大谷茂盛：東北地区化学工学懇話会要旨集（昭45-10月）p.5
- 47) 鈴木睦，遠藤敦，大谷茂盛：化学工学北海道大会要旨集（昭43-3月）p.49
- 48) 鈴木睦，大谷茂盛，前田四郎：化学工学第29年会要旨集（昭39-4月）p.75
- 49) 桐栄良三編：乾燥装置（日刊工業，昭41）
- 50) J. F. Pearse, T. R. Oliver, D. M. Newitt: *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 27, 1 (1949)
- 51) T. R. Oliver, D. M. Newitt: *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 27, 9 (1949)
- 52) 大谷茂盛，鈴木睦，前田四郎：化学工学，27，633（昭38）
- 53) 久保田徳昭，河上忠男，大谷茂盛：化学工学，32，822（昭43）
- 54) A. E. R. Westman: *J. Am. Ceram. Soc.*, 16, 256 (1933)
- 55) D. M. Newitt, M. Coleman: *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 30, 28 (1952)
- 56) 若林嘉一郎：粉体工学，2，29（昭41）および粉体工学レポート（昭40）p.1085およびp.1153
- 57) 若林嘉一郎：化学工学，28，12（昭39）
- 58) 若林嘉一郎：化学工学，28，33（昭39）
- 59) P. Görling: *Chem. Ing. Techn.*, 28, 768 (1956)
- 60) O. Krischer: *Chem. Ing. Techn.*, 34, 154 (1962)
- 61) 林信也：化学工学第2回総合シンポジウム要旨集（昭38-11月）p.20
- 62) D. Kunii, J. M. Smith: *A. I. Ch. E. J.*, 6, 71 (1960)
- 63) 棚沢泰：日本機械学会誌，35，390（昭7）
- 64) 棚沢泰：機械学会論文集，1，217（昭10）および2，352（昭11）
- 65) 木村允：化学工学，23，502（昭34）
- 66) 斎藤武，岡垣理：日本機械学会誌，62，741（昭34）
- 67) 森田矢次郎：日本機械学会誌，63，1177（昭35）
- 68) O. Krischer: *Z. VDI*, 79, 1315 (1935)
- 69) O. Krischer, H. Esdorn: *VDI-Forsch.*, 22, 1 (1956)
- 70) A. H. Nissan, D. Hansen, J. L. Walker: *Chem. Eng. Progr. Symp. Series*, 59, 114 (1963)
- 71) 岡崎守男：乾燥に関するシンポジウム要旨集（昭46-5月）p.6
- 72) 桐栄良三，岡崎守男，伊藤郁雄，岡本幸彦：第7回熱測定討論会要旨集（昭46-11月）p.64
- 73) 岡田富男，佐々木保正，遠藤敦，大谷茂盛：第7回日本伝熱シンポジウム論文集（昭45-5月）p.149
- 74) 大谷茂盛，山川紀夫，遠藤敦：第7回熱測定討論会要旨集（昭46-11月）p.62
- 75) E. R. G. Eckert, R. M. Drake: *Heat and Mass Transfer* (McGraw-Hill, 1959) p.310
- 76) A. V. Lykov: *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 6, 559 (1963)
- 77) M. W. Rubesin, C. C. Pappes: *NACA, Tech. Note*, 4149
- 78) 林信也：京都大学学位論文（昭40）
- 79) たとえば化学工学便覧（丸善，昭43）p.633
- 80) 鈴木睦，前田四郎：第3回伝熱シンポジウム論文集（昭41-5月）p.161
- 81) H. H. Macey: *Trans. Brit. Ceram. Soc.*, 41, 73 (1942)
- 82) P. Görling, H. Beuschel: *Chem. Ing. Techn.*, 31, 393 (1959)
- 83) 亀井三郎，桐栄良三：化学機械，16，372（昭27）
- 84) 坂山四郎，大谷茂盛，大内義三：化学工学，28，1023（昭39）