

電気浸透脱水過程における電極と脱水 試料との接触電気抵抗について

吉 田 裕 志

Experimental Consideration for Electrical Contact Resistance between Electrode and Dewatered Material in Electroosmotic Dewatering Process

Hiroshi Yoshida

電気浸透脱水法においては、脱水の進行に伴って脱水試料の含水率が減少することによって電極と試料との接触状態がしだいに不良になるため、電極－試料間の電氣的接触抵抗が著しく増加するようになって脱水の進行を阻害するようになる。したがって、本方法を実施する上で、この接触電気抵抗の増加を抑制することや経時変化を推察することは電気浸透脱水過程の理論推定のためにも極めて重要なことになる。

本報告では、電気浸透脱水過程における接触電気抵抗の増加に関して理論および実験結果に基づいて考察し、また、その抑制方法の実験結果例について示す。

緒 言

電気浸透脱水においては、脱水に伴って電極と脱水試料との電氣的接触抵抗の顕著な増加が脱水の進行を阻害する大きな要因となる¹⁾²⁾が、この電極－試料間の接触電気抵抗の増加は電極近傍の脱水試料の含水率に主に依存すると考えられる。したがって、電気浸透脱水過程を理論的に推定するためには、含水率の変化に伴う接触電気抵抗の経時変化についての推察が重要であり、接触電気抵抗の変化が推算できるようになって電気浸透脱水プロセスはより厳密に推定できることになる。また、本方法を実施する上で接触電気抵抗の増加を抑制する方法は実際の問題として極めて重要なこととなる。

本報告では、これまでに提案してきた電気浸透脱水理論に基づく推算結果と実測結果の比較から、接触電気抵抗の推定が電気浸透脱水過程の理論計

算に極めて重要であることを明らかにするとともに、その推定方法について考察を行った。

また、電気浸透脱水を実施するときの電場の印加方法としては、これまでほとんど直流電場が用いられてきているが、電極の周期的極性反転や断続的電場など他の印加方法が実験的に検討されている³⁻⁵⁾。しかし、これらの研究は前述の接触電気抵抗の視点からのものではなく、ここでは、脱水阻害を起こす大きな要因である接触電気抵抗の増加を抑制するという見地から、電極の極性の周期的反転による交流電場や断続的電場の印加による実験結果について示す。

1. 電気浸透脱水理論の概要

電気浸透脱水実験のために一般的に使用される回分式装置はFig.1のようである。すなわち、試料である湿潤粒子充填層を上下2つの電極で挟み、

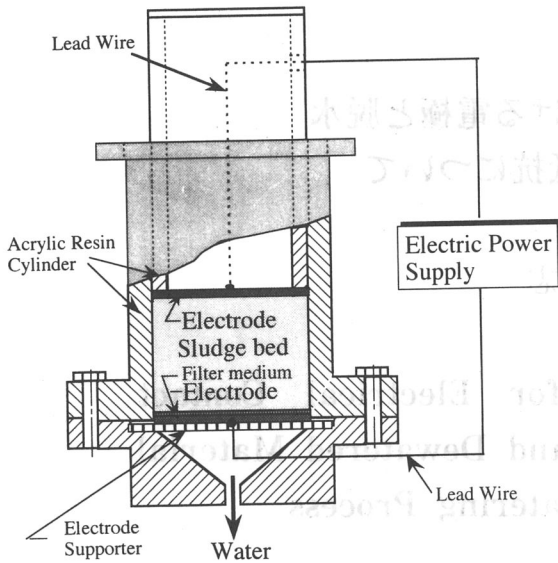


Fig.1 Batch-type experimental apparatus for electroosmotic dewatering

電極間に電場を印加することによって電気浸透現象を利用して装置下方に脱水分離するものである。このとき、通常、電極と試料間には濾紙などの濾材が上下両側、あるいは下側だけに設置される。また、一般に電場は定電圧操作あるいは定電流操作の条件下で印加される。このような状況に対して、電気浸透流動に関する式、Ohmの法則、および粒子層中の液体についての物質収支の基本式を適用すると電気浸透脱水過程を表す基礎式が以下のように導かれる。

Eq.(1)は、Fig.1において上部には濾材が無く、脱水に伴って湿潤粒子層の高さが減少するのに追従して上部電極が降下する場合に得られる脱水基礎式である⁶⁾。

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \rho_p \alpha I f(\epsilon_w) \frac{\partial q}{\partial \omega} \quad (1)$$

ここに、 q は電気浸透流の見かけの線速度、 ρ_p は固体粒子の密度、 α は電気浸透度、 I は粒子層断面を流れる電流密度、 $f(\epsilon_w)$ は体積基準の含水率 ϵ_w の関数であることを表す。また、 t は脱水時間、 ω は粒子層の濾材面からの高さを表す一種の固定座標であり、任意の高さにおける粒子層単位断面積当りの固体粒子の堆積質量である。

Eq.(2)は、Fig.1の実験装置において上部電極に一定荷重圧力を加え、粒子層を機械的に圧縮すると同時に電場を印加した場合について導かれる基礎式である⁷⁾。

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \rho_p I \left(\frac{dg(e)}{de} \right) \frac{\partial q}{\partial \omega} \quad (2)$$

上式における $g(e)$ は空隙比 e の関数を表し、 e

は粒子層中の液相と気相全体の空隙率 ϵ および含水率 ϵ_w と次式のような関係にある。

$$e = \frac{\epsilon_w}{1 - \epsilon} \quad (3)$$

Eq.(1)における α は一般に定数として扱われるが、機械的荷重圧力を加えるときは e に依存するようになることが実験的に明らかにされている⁷⁾ので、 α は $g(e)$ に含まれている。

また、粒子層に機械的荷重圧力を加える場合、多孔性材料中の電気浸透速度に基づいて粒子層中の液圧 p_L の変化を考慮すると、次のような脱水基礎式が誘導される⁸⁾。

$$\frac{\partial e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \omega} \left\{ \frac{1}{\mu \alpha_c \rho_p} \left(\frac{\sigma_s \rho_E I}{\epsilon} - \frac{\partial p_s}{\partial \omega} \right) \right\} \quad (4)$$

ここに、 σ_s は固体粒子単位体積当りの表面電荷量、 ρ_E は液体単位体積当りの電荷密度、 μ は液体の粘度、 α_c は水力学的流動比抵抗、 p_s は固体粒子圧縮圧力で、 p_L と次式のような関係が成立する⁸⁾。

$$\frac{\partial p_L}{\partial \omega} + \frac{\partial p_s}{\partial \omega} = 0 \quad (5)$$

上記のEqs.(1), (2)および(4)はいずれも類似の形式であり、これらの式をそれぞれの状況に応じて適当な初期条件および境界条件で数値計算すると、電気浸透脱水過程における関係諸量の経時変化の推算ができる。

2. 理論推定結果と実測値の比較

定電圧条件下で脱水試料層を流れる電流 i 、脱水量 Q および試料層高さ H の経時変化について、Eq.(1)に基づいて得られる推算結果と実測値を比較した⁹⁾のがFig.2である。図から、測定時間内における電流 i の変化は、実線の推算値が時間の経過とともにしだいに増加するのに対して、実測値はある時間経過後は増加傾向から反対に減少する傾向を示し、試料層の電気抵抗が減少から増大に転じることが示唆されている。この経過時間以降、 Q の実測値は推算値よりやや小さくなり、 H の実測値は推算値より大きくなる傾向が見られ、実測値と推算値は一致しなくなる。

Fig.3は、機械的荷重圧力 P を加えた状態で電場を印加したときの定電流条件における印加電圧 V の経時変化について、Eq.(2)に基づいて得られる推算値と実測値を比較したものである。印加する定電流密度 I の値が大きくなると、実線で示される推算値に対して実測値はしだいに急増するようになり、実測値と推算値との差が大きくなることを表している。この印加電圧 V の急増は試料

電気浸透脱水過程における電極と脱水試料との接触電気抵抗について

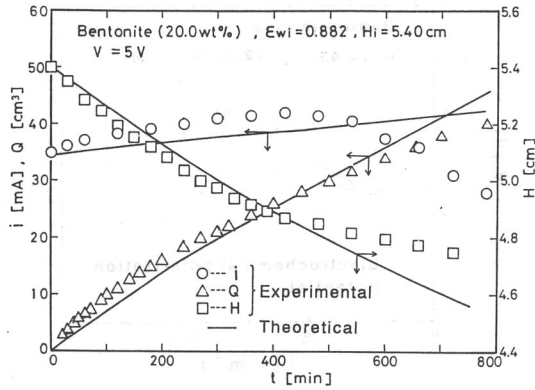


Fig. 2 Experimental and theoretical time variations of electric current i , dewatered volume Q and sludge bed height H under constant voltage

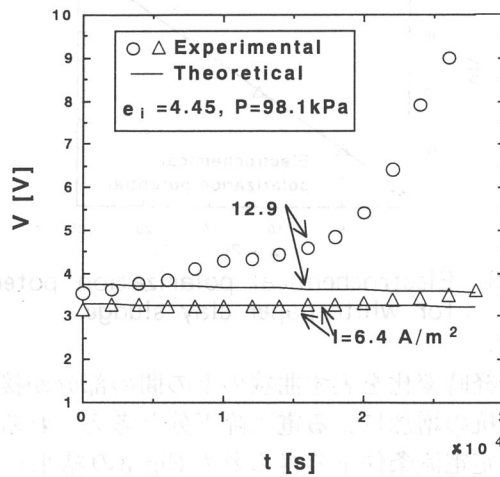


Fig. 3 Experimental and theoretical time variations of applied voltage V under constant electric current

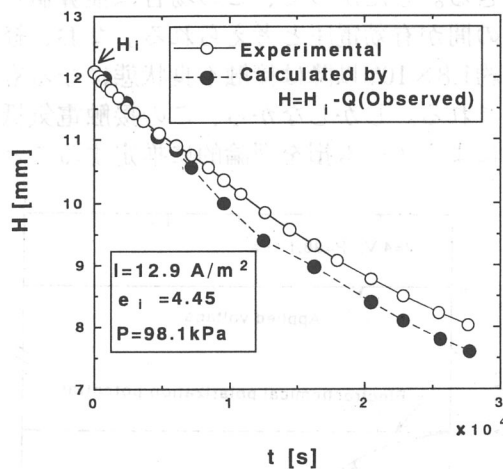


Fig. 4 Experimental and calculated time variations of sludge bed height H under constant electric current

層の電気抵抗が著しく増大するようになることを示唆している。また、このときの試料層高さ H の経時変化について、実測値と脱水液量 Q の実

測値から算出される H の値を比較したのが Fig. 4 である。 H の実測値はある経過時間後には計算値より大きくなる傾向が見られるが、このことは試料層中に空隙部分が増加する、すなわち脱水に伴って試料層が不飽和の状態になることを示唆している。これらの結果から、前述の電気抵抗の増大は試料と電極との接触電気抵抗に主に依存しているものと考えられる。

Eq.(4)に基づく推算値と実測値の比較について、定電圧条件下の電流密度 I と試料単位断面積当りの脱水液量 Q_a の経時変化を Fig. 5 に示した。この場合も、 I の推算値に対して実測値は脱水時間の初期から減少し始めるため、脱水量 Q_a の実測値は推算値に対して小さい値を示すようになる。経過時間によるこれらの変化についても前述の接触

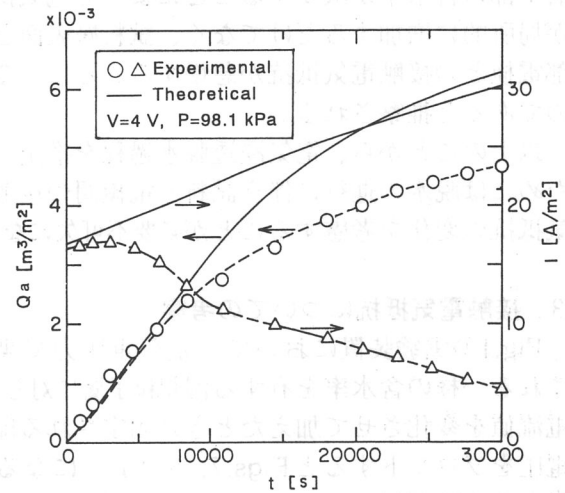


Fig. 5 Experimental and theoretical time variations of electric current i and dewatered volume per unit cross-sectional area of bed Q_a under constant voltage

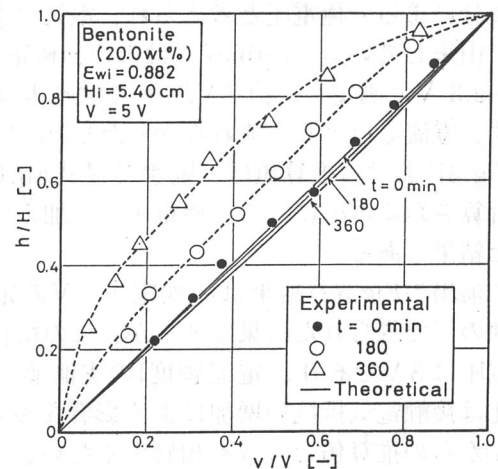


Fig. 6 Experimental and theoretical time variations of electric potential difference distribution under constant voltage

電気抵抗の増加によるものと考えられる。

Fig.6は、Fig.2に示した結果を得たときに同時に測定された試料層内の電位差分布の経時変化を示したものである。図において、縦軸の h/H と横軸の v/V はそれぞれ無次元化した試料層高さと電位差を表し、 $h/H=1.0$ は脱水時間には無関係に試料層上表面を表している。Eq.(1)に基づく推算値である実線の電位差分布曲線は、破線で示した実測値の分布曲線に対して初期分布（直線）を間にして対称的な結果となっており、その分布曲線の傾向は実測結果に対して著しい相違を示している。すなわち、推算値による電位差分布の経時変化が初期の分布からほとんど大きな変化を示さないのに対して、実測値の電位差分布曲線の経時変化は層上部において著しく電位降下が生じることを表している。これは、脱水が進むにつれて層上部の含水率が減少することによって電気抵抗が局所的に増加するだけでなく、試料層表面と上部電極との接触電気抵抗が急増することによるものであると推察される。

以上のことから、電気浸透脱水過程を推定するためには脱水の進行に伴う試料-電極間の接触電気抵抗の変化を考慮することが必要不可欠になる。

3. 接触電気抵抗についての考察

Fig.1の実験装置において一定荷重圧力で調整される一様の含水率を有する湿潤粒子層に対して、電流値を変化させて加えたときに測定される印加電圧をプロットするとFigs.7, 8のようになる。異なる実験試料について得られた結果である。両方の試料において、 V と I の関係はOhm損によってほぼ直線関係で表されるが、 $I=0$ の縦軸までその直線を外挿するとその切片値はおよそ2~3 V程度となる。この値は水の理論分解電圧と過電圧分による分極電圧と考えられ、電気化学的反応に由来している。Rabieら⁴⁾はこの分極電圧を1.8~2.3 Vと測定し、約2 V以下では脱水は起こらず、電流もほとんど流れなかったと報告している。Fig.3における推算値は、脱水基礎式Eq.(2)から計算される電圧にこの分極電圧分を加えて補正した結果である。

前出のFig.5の結果は印加電圧4 Vの定電圧条件の下で得られた結果であるが、この場合の分極電圧は3 Vであり、電流密度 I の実測値の経時変化は接触電気抵抗の増加による影響を受けてEq.(4)からの推算値と大きく相異なるため、実測値 I から印加電圧を求めると、Fig.9に示すような有効電圧の経時変化が推算される。図において、印加定電圧から分極電圧を減じた破線の下で有効電

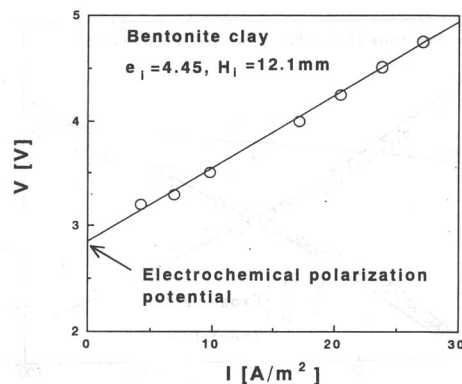


Fig.7 Electrochemical polarization potential for bentonite clay sludge

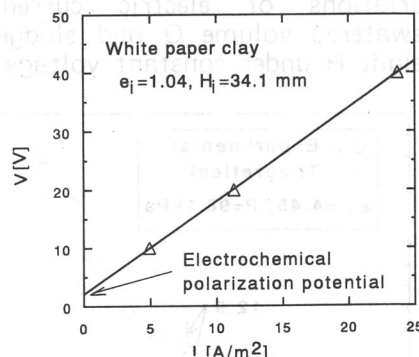


Fig.8 Electrochemical polarization potential for white paper clay sludge

圧の経時変化を表す曲線の上の間の部分が接触電気抵抗の増加による電圧降下分と考えられる。また、定電流条件下で得られたFig.3の結果に対しては、同様に考えるとFig.10のように示され、接触電気抵抗の経時変化の影響が実測値と推算値の間の部分の電圧増加分として現れると考えることができる。したがって、この場合は推算値と分極電圧の間が有効電圧と考えられる。なお、経過時間が約 1.8×10^4 s以降は接触不良状態になるものと推察される。しかしながら、この接触電気抵抗の増加によるオーム損を理論的に推定することは極

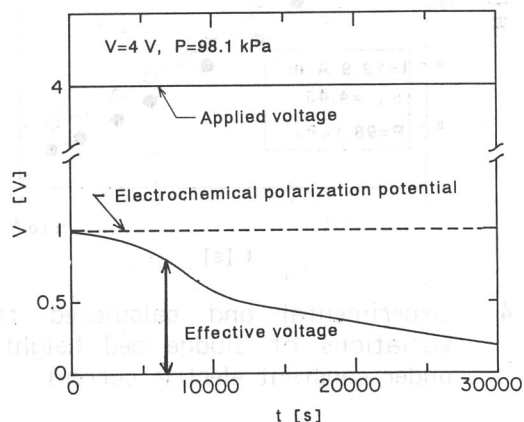


Fig.9 Time variation of effective voltage under constant voltage

電気浸透脱水過程における電極と脱水試料との接触電気抵抗について

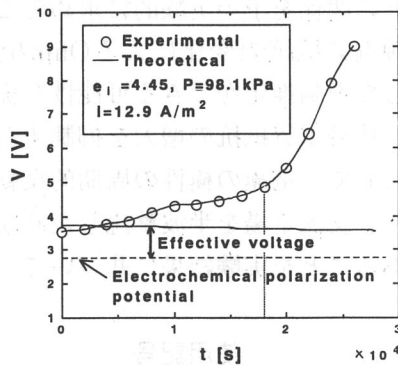


Fig. 10 Time variation of effective voltage under constant electric current

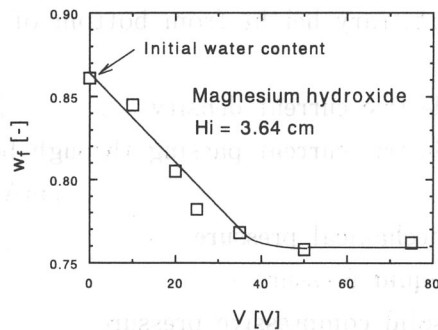


Fig. 11 Relation between terminal water content w_f and constant applied voltage V for magnesium hydroxide sludge

めて困難であると言える。

ところで、上部電極と試料層（濾材が介在する場合もある）との接触電気抵抗は電極近傍の含水率に主に影響を受けると考えられる。Fig. 11は、水酸化マグネシウムを試料として使用した場合の定電圧条件下での脱水終了後の上部電極近傍の試料層の質量基準の含水率 w_f と印加電圧との関係を示したものである。このときの含水率の値は印加電圧に対する限界含水率を表すと考えられるので、図の結果は印加電圧に対して限界含水率が直線的に減少し、ある印加電圧（この場合は約 40 V）以上ではほぼ一定となることを示している。したがって、電極に近接した試料の含水率が接触電気抵抗に起因する電圧降下、すなわち印加電圧のほとんどを占めると仮定すれば、脱水基礎式に基づく電極近接の試料層の含水率の推算値から、接触電気抵抗の増加分による印加電圧をFig. 11に示したような測定結果に基づいて近似的に推定することができると思われる。

また、同様な考え方から、Figs. 7, 8で示されたような測定を含水率の異なる試料に対して行い、含水率と印加電圧、および電流値相互の関係を実験的に求めておくことによって、接触電気抵抗

の影響を考慮した印加電圧あるいは電流の近似推定が可能であると考えられる。いずれにしても電気浸透脱水法の今後の検討課題であると思われる。

4. 接触電気抵抗の増加を抑制する電場印加方法

4.1 電極の周期的極性反転による交流電場^{10,11)}

直流電場では脱水は下側へ一方方向に進むので上部電極と試料との接触電気抵抗の増加を生じ、脱水の進行が阻害されるようになるため、これを抑制する一つの方法として電極の極性を切り換える交流の電場印加が考えられる。すなわち、機械的荷重圧力を試料層に加えながら電極の極性を周期的に反転させることによって粒子層の上下両側へ交互に脱水する方法である。この方法では極性反転の時間は電気浸透速度を考慮して行う必要があり、例えばFig. 12に示すように、定電圧条件下において極めて低い周波数（0.001 Hz）の極性反転時間（500 s）で実験を行った結果では、電流 i の経時変化が急減する直流電場に比べて、 i の値はほぼ一定を示すようになり、接触電気抵抗の増加の影響は見られないことがわかる。そして、このような操作条件では、脱水速度は直流電場に及ばないものの、最終の脱水液量は増加できるという結果が得られている。

4.2 交流電場の半波整流による断続的電場¹²⁾

連続的な直流電場に対して断続的な電場印加も接触電気抵抗の増加を抑制できると期待される。電場印加を休止している間に機械的荷重圧力によって電極と試料との接触が良好な状態に回復すると考えられるからである。

前述の交流電場を半波整流した断続的電場での電流の経時変化はFig. 13のように示される。なお、図の縦軸 i/i_1 は電流 i を電流の初期値 i_1 で除して

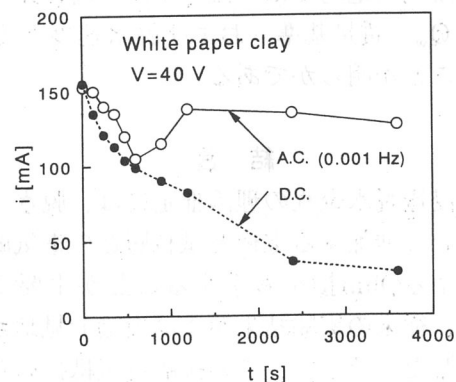


Fig. 12 Time variation of electric current i under constant voltage with periodic reversals of electrode polarity

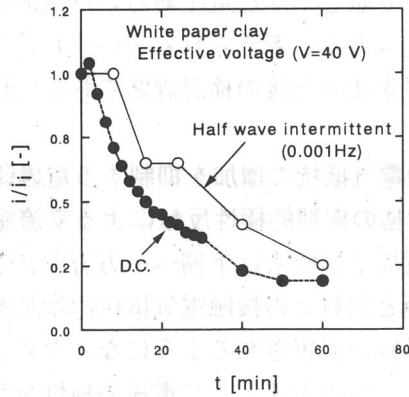


Fig. 13 Time variation of dimensionless electric current i/i_i under constant voltage with half wave intermittent

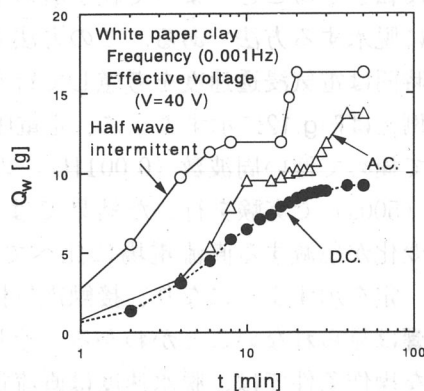


Fig. 14 Time variation of dewatered amount Q_w under constant voltage with half wave intermittent

無次元化した値である。また、断続的電場 (Half wave intermittent) における印加電圧は直流と同じ実効電圧とした場合である。断続的電場では周期的に電流は0になるが、測定される電流値を連続的に表示している。図より、断続的電場における電流値の減少は直流電場ほど著しくなく、接触電気抵抗の増加の影響は明らかに抑制されていることが示唆される。また、Fig. 14に示されるように、断続的電場では直流や交流電場に比べて脱水量 Q_w (質量基準) および脱水速度とも増大できることが明らかである。

結 言

電気浸透脱水過程の理論推定には、脱水に伴ってしだいに増加する電極と試料層との電気的接触抵抗によるOhm損を考慮することが重要であることを、従来の実験結果および理論的見地から明らかにした。そして、この接触電気抵抗の経時変化についての推察を行い、脱水終了後の電極近傍の試料層の限界含水率と印加定電圧との関係、あるいは試料層の含水率を変えたときの印加電圧と

電流値との関係を予め実験的に求めることによって、接触電気抵抗の変化によるOhm損を近似的に考慮した理論推定ができる可能性を提示した。

また、接触電気抵抗の増大を抑制する電場の印加方法として、電極の極性の周期的反転による交流電場や、交流電場を半波整流した断続的電場が有効であることを実験結果に基づいて示した。

使用記号

- e = void ratio defined by Eq.(3) [-]
 H = height of particle packed bed [mm], [cm]
 h = arbitrary height from bottom of bed [cm]
 I = electric current density [A/m^2]
 i = electric current passing through bed [mA], [A]
 P = mechanical pressure [kPa]
 p_L = liquid pressure [Pa]
 p_s = solid compressive pressure [Pa]
 Q = dewatered volume [cm^3]
 Q_a = dewatered volume per unit cross-sectional area of bed [m^3/m^2]
 Q_w = dewatered weight [g]
 q = superficial linear velocity of electroosmotic flow [m/s]
 t = dewatering time [s], [min]
 V = applied voltage [V]
 v = electric potential difference [v]
 w_r = terminal water content [-]
 α = electroosmotic coefficient [$m^2/(V \cdot s)$]
 α_c = specific hydraulic resistance [m/kg]
 ε = porosity [-]
 ε_w = volumetric water content [-]
 μ = viscosity of liquid [Ps · s]
 ρ_E = density of electric charge per unit volume of liquid [C/ m^3]
 ρ_p = density of particle [kg/ m^3]
 σ_s = effective charge on solid surface per unit volume of solid [C/ m^3]
 ω = mass of particles per unit cross-sectional area of bed at h [kg/ m^2]

<Subscript>

i = initial value

電気浸透脱水過程における電極と脱水試料との接触電気抵抗について

引用文献

- 1) Yoshida, H., T. Shinkawa and H. Yukawa:
J. Chem. Eng. Japan, 18, 337 (1985)
- 2) Yoshida, H.: Drying Technology, 11, 787
(1993)
- 3) Lockhart N. C. and G. H. Hart: Drying
Technology, 6, 415 (1988)
- 4) Rabie H. R., A. S. Mujumdar and M. E.
Weber: Separation Technology, 4, 38 (1994)
- 5) Gray D. H. and F. Somogyi: J. Geotechnol.
Eng. Div. ASCE, 103 (GT1), 51 (1977)
- 6) 吉田裕志・油川 博: 化学工学論文集, 12,
707 (1986)
- 7) Yoshida, H. and A. Yasuda: Drying '92,
Part B, ed. by A. S. Mujumdar, Elsevier,
1814 (1992)
- 8) Iwata M., H. Igami, T. Murase and H.
Yoshida: J. Chem. Eng. Japan, 24, 45 (1991)
- 9) 吉田裕志・油川 博: 化学工学論文集, 13,
466 (1987)
- 10) 吉田裕志: ケミカルエンジニアリング, 41,
47 (1996)
- 11) Yoshida, H., M. Nakayama and K. Kitajyo:
Drying Technology, to be published.
- 12) 吉田裕志・佐藤志保・山崎祐二・渡辺孝司:
濾過分離シンポジウム '97, 61 (1997)

小山工業高等専門学校 物質工学科

E-mail address : yoshida@oyama-ct.ac.jp

(受理年月日 1998年9月30日)

