

京都大学工学部 正 〇北尾 高嶺
京都大学工学部 正 菅原 正孝
厚生省 岡崎 誠

1. はじめに

濃度分極に関する理論的研究は、今まで多くなされているが、濃度分極の実測は十分なされていない。そこで本研究では、透過液から膜面上の溶液濃度を間接的に測定する方法について検討を加えた。

2. 膜面上濃度の間接測定法

逆浸透膜を通しての水透過速度、 J_w は一般に次式で表わせる。⁽¹⁾

$$J_w = A(\Delta P - \Delta \pi) \quad \text{----- (1)}$$

ここに、 A は膜定数、 $\Delta P (= P_1 - P_2)$ 、 $\Delta \pi (= \pi_1 - \pi_2)$ はそれぞれ膜をへだてた圧力差および浸透圧差である。なお、添字 1, 2 はそれぞれ高压側、低压側を表わす。式 (1) より膜面上の浸透圧、 π_1 は

$$\pi_1 = \Delta P - J_w/A + \pi_2 \quad \text{----- (2)}$$

となる。この式において、 ΔP は通常、操作圧力と考へてよい。また、 A は純水または希薄溶液を用いて ΔP に対する J_w の変化から求めることができる。したがって、逆浸透実験における透過水の速度および濃度を実測することにより式 (2) を用いて、膜面上の濃度 C_1 を得ることができる。

3. 実験装置および実験方法

理論化が比較的進んでおり、また実験上も有利である静置状態における濃度分極現象を取り扱った。実験に用いた逆浸透装置の内部は、膜上に円筒パイプを取り付けた構造になっている。加圧は窒素ガスによったが、操作圧力は、実験期間中 20 kg/cm^2 に保った。使用した膜は、通常の Loeb 型のセルロースアセテート膜で、その性能は、図中に示すとうりである。溶液は、ナトリウム濃度で 2410 ppm (0.105 mol/l) の食塩水を用いた。室温は、つねに 22°C の一定に保持した。透過速度は、透過液を 10 ml のビーカーに受け、ストップウォッチで計時して求めた。また、ナトリウム濃度は、原子吸光光度法により求めた。溶液は、Run 1 では 50 ml 、Run 2 では 30 ml を高压セルに入れ、透過液の出なくなるまで運転し続け、その間、透過液の流出速度および濃度を時間的に追跡した。そして終了後、セル内に残った流量およびその濃度を測定した。なお、浸透圧と濃度の換算

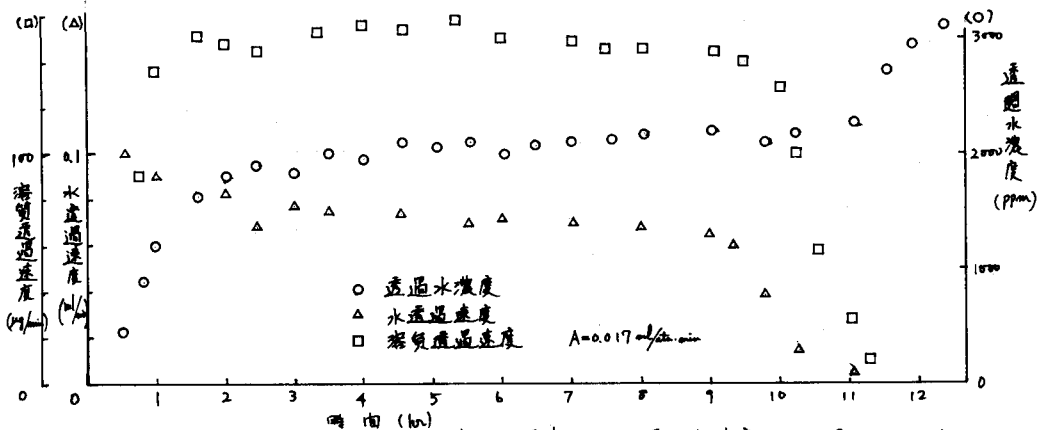


図1. 静置実験における水透過速度、溶液透過速度および透過水濃度の経時変化(Run 1)

には, Stoughton⁽²⁾らのデータを用いた。

4. 実験結果および考察

水透過速度, 透過液濃度および溶質透過速度の経時変化を図-1 (Run 1), 図-2 (Run 2) に示す。Run 1 の結果によると, 透過水は出はじめから 2 時間くらいまでは, 水透過速度の減少にともない, 透過水濃度は急激に増加している。その後, 10 時間近くまでは, ともに緩やかな変化を示しているが, この間では, 膜面上での溶質の蓄積 (膜による分離のために生ずる) と, セル内溶液本体への分子拡散による移動とのバランスがある程度保たれていると推察される。その後は, セル内溶液量の減少により, そのバランスが一挙に崩れて, 11 時間附近では水透過量はほぼ 0 になり, $\Delta P \approx \Delta \pi$ に相当する膜面上濃度になっていることを示している。Run 2 においても同様な傾向がうかがわれる。Run 2 では, 除去率が高く, 水透過量の少ない膜を用いているので, 時間的には Run 1 の倍近くかかっている。中期における透過水濃度および水透過速度の変化は, Run 1 に比較して, 急であるが, 溶質透過速度としては, ほぼ一定の状態が続いている。なお, Run 2 の初期における乱れは, 前の実験時の溶液が膜支持板中に残存していたためのものである。

つぎに, 濃度分極形成の理論に基づく計算値と間接測定法による値とを比較した。理論解としては, Williams⁽³⁾らが, 任意の δ , R に対して成り立つように求めた解に, $X=0$ (膜面から高圧側に入るとする) を代入した式を用いた。ただし, この場合, 水透過速度は一定であると仮定している。

$$\frac{C_1}{C_0} = 1 + \frac{R}{2(1-R)} \operatorname{erfc}\left(-\frac{\sqrt{\tau}}{2}\right) - \frac{1}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{\tau}}{2}\right) - \frac{2R-1}{2(1-R)} \exp\{-R(1-R)\tau'\} \operatorname{erfc}\left[-(2R-1)\frac{\sqrt{\tau}}{2}\right] \dots (3)$$

ここに, $\delta \equiv R\pi_0/\Delta P$, $\tau \equiv A^2(\Delta P)^2 t/D$, $\tau' \equiv \tau(1-\delta)^2$, C_0 は溶液本体の濃度, R は除去率, t は時間, D は拡散係数である。Run 2 について, $R=0.9$ の仮定のもとに計算した結果を, 透過水の実験に基いて算出した値と一諸に図-3 に示す。両者を比較すると, 初期はともかく, 時間の経過にしたがって差がますます開いていき, よく一致しているとは言えない。この原因については, いくつか考えられるが, 実験上の問題としては, セル内溶液に少しの乱れも起こらないで静置させることの困難さがあげられる。なお, この点に因しては, 現在さらに検討を続けており, 詳細については講演時に述べる。

図-2. 静置実験における水透過速度, 溶質透過速度および透過水濃度の経時変化 (Run 2)

<参考文献>

- (1) たとえば, Lonsdale, H. K., U. Merten, and R. L. Riley, J. Appl. Polymer Sci. 9, 1341 (1965)
- (2) Stoughton, R. E., and M. H. Lietzke, J. Chem. Eng. Data 10, 254 (1965)
- (3) Liu, M. K., and F. A. Williams, J. Heat Mass Transfer. 13, 1441 (1970)

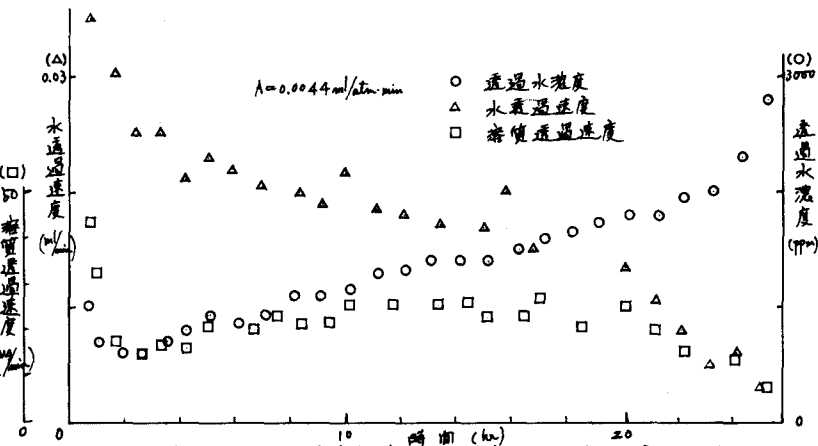


図-2. 静置実験における水透過速度, 溶質透過速度および透過水濃度の経時変化 (Run 2)

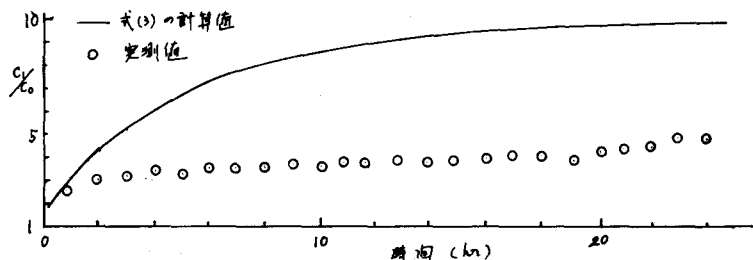


図-3 膜面上の濃縮度の経時変化