

凝集性浮遊粒子の数値シミュレーション

A MATHEMATICAL MODELLING OF FLOCCULATION AND DISRUPTION PROCESSES

松岡 譲*

By Yuzuru MATSUOKA

The comprehensive treatment of coagulation and breakage of floc based on a general dynamic equation (GDE) was studied using a mathematical modelling technique.

Several submodels of the coagulation rate, the disruption rate, and the collision efficiency factor were developed from theoretical inference+experimental observation. Combining these submodels, a general dynamic equation expressing the change of particle distribution was developed. A numerical method to solve the GDE equation was proposed allowing the overall behavior of the model to be calculated.

The results were compared with experiments of Kaoline-alum flocculation, successfully.

1. まえがき

水中の浮遊性粒子の挙動解析を行う際、しばしばその凝集性が問題となる。水処理における薬品凝集の重要性はいうまでもない。また湖沼・感潮部などの一般水系中においても凝集性をもった浮遊性粒子群の挙動がしばしば問題となっている¹⁾。水中にて集塊せず単分散している粒子を一次粒子と称するが、これらが①近接・付着可能な状態であり、②粒子間の衝突を促進する何らかの要因があるならば集塊を始める。生成された集塊はフロック、コアギュレート、アグロメレートなどと称されるが浮遊粒子の挙動解析を行ううえで特に問題となるのは上記の集塊のうち最も含水率が高く、有効密度が小さいフロックである。フロックは水中での沈降速度が小さいため易動度は大きい脆弱でありわずかの外力によって破壊される。一般に含水率・結合強度は粒子によって異なり、特に粒度と強い相関をもつ。

本論文ではこうした水中浮遊粒子の挙動のうち凝集・破壊の動力学という立場から粒度分布変化の数値予測手法の確立に努めている。研究の方法としては粒度分布の変化を記述する“一般化動力学方程式 (GDE)”を中心

にそれに関連する個々のサブプロセスに検討を加えることによって予測手法としての精緻化を図った。本論文では対象例を浄水処理フロック形成プロセスに限っているが、手法自体はこれにとどまることなく一般水系中の凝集性浮遊粒子にも適用が可能であると考えられる。

2. 凝集性浮遊粒子に関する基礎方程式

検討の対象を粒度空間に限定する。粒度変化の主因が凝集、破壊によって生じているときを考えることにするとこれを記述する基礎方程式としては次の表現がある。

$$\frac{\partial n(w, t)}{\partial t} = \frac{\partial n(w, t)}{\partial t} \Big|_{\text{coas}} + \frac{\partial n(w, t)}{\partial t} \Big|_{\text{br}} \dots \dots (1)$$

$n(w, t)$ は粒子中に含まれる固相部質量が w であるような粒子の粒子数密度、 t は時刻である。また $\partial n / \partial t|_{\text{coas}}$ は粒子の衝突合一 (凝集) による、 $\partial n / \partial t|_{\text{br}}$ は粒子の破壊による粒子数変化を示す項である。まず最初の $\partial n / \partial t|_{\text{coas}}$ に関し Müller²⁾ は $K(w, w')$ を凝集係数、 α を衝突合一係数として次のように表わしている。

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(w, t)}{\partial t} \Big|_{\text{coas}} = & \frac{1}{2} \int_0^w \alpha K(w', w-w') n(w) \\ & \cdot n(w-w') dw' - n(w) \int_0^\infty \alpha K(w, w') \\ & \cdot n(w') dw' \dots \dots \dots (2) \end{aligned}$$

* 正会員 工修 京都大学工学部助手 衛生工学教室
(〒606 京都市左京区吉田本町)

一方、 $\partial n/\partial t|_{br}$ は粉碎理論などでよく取り扱われており、Bass³⁾は

$$\frac{\partial n(w, t)}{\partial t} \Big|_{br} = -P_b(w)n(w) + \int_0^\infty \frac{w'}{w} \frac{\partial}{\partial w} \cdot B(w, w')n(w')dw' \dots\dots\dots (3)$$

としている。ここに $B(w, w')$ とは w' の粒子が破壊して w 以下の粒子となる割合 (質量基準) であり、 $P_b(w)$ とは $B(w, w)$ 、すなわち単位時間当たりに w の粒子が破壊される割合を表わす。いま $B(w, w')$ を

$$B(w, w') = P_b(w')G(w, w') \dots\dots\dots (4)$$

と記せば、 $G(w, w')$ は $G(0, w')=0$ 、 $G(w, w')=1$ となる w に関する単調増加関数である。式 (1), (2), (3) は w を基礎量とするがこれは固相質量が粒子の衝突、破壊などのプロセスにおいて保存されると仮定したためである。粒子体積、粒径などを基礎量とする場合には変数変換に関するヤコビアンを考慮しなければならない。

3. 凝集係数

凝集係数 $K(w, w')$ は分子拡散、沈降速度差など種々の現象に左右されるが、本節では検討を乱流運動に起因するものに限定する。Saffman ら⁴⁾は等方性乱流理論に基づき有効密度一定でありミクロスケール以下の粒径をもった粒子の凝集係数を計算しているが、同様の仮定のもとで有効密度 ρ_e が粒径によって変化するようなフロック粒子の凝集係数を求めてみると次のようになる。

$$K(d_1, d_2) = \sqrt{8\pi} \left(\frac{d_1+d_2}{2} \right)^2 \left[\left(\frac{1}{18\mu} \right)^2 (\rho_e d_1^3 - \rho_e d_2^3)^2 \cdot \left\{ \left(\frac{Du_e}{Dt} \right)^2 + \frac{1}{3} g^2 \right\} + \frac{1}{9} \left(\frac{d_1+d_2}{2} \right)^2 \frac{\varepsilon}{\nu} \right]^{1/2} \dots\dots\dots (5)$$

ここに、 d_1, d_2 は粒径、 μ は粘性係数、 Du_e/Dt は流体加速度、 g は重力、 ε はエネルギー逸散率、 ν は動粘性係数であり、 ρ_e は有効密度である。式 (5) 右辺の [] 内はそれぞれ (i) 密度差に基づく粒子慣性力の違い、(ii) 重力沈降速度差、(iii) 乱流速度変動による衝突効果を示し、たとえば $(Du_e/Dt)^2$ に Bachelor⁵⁾ による $1.3 \nu^{-1/2} \varepsilon^{3/2}$ を、 $\rho_e = a d^{-kn}$ の $a, K\rho$ にカオリンバンドフロックの概略値である $10^{-4}, 1.0$ (cgs 単位) を代入し、各項の比を計算してみると Fig. 1 のようになる ((i)/(iii) を実線で、(ii)/(iii) を点線で示している。また ρ_e は 1.6 g/cm^3 を越えないものとした)。したがって $G=(\varepsilon/\nu)^{1/2}=1$ (1/s) 程度以上では乱流速度変動による衝突効果が卓越する。以上は Saffman らの仮定に基づく検討であるが、これの欠点は粒径をミクロスケール以下に限定しなければならないことである。ミクロスケール η とは $(\nu/G)^{1/2}$ であり G 値が $10 \sim 100$ にて 0.1

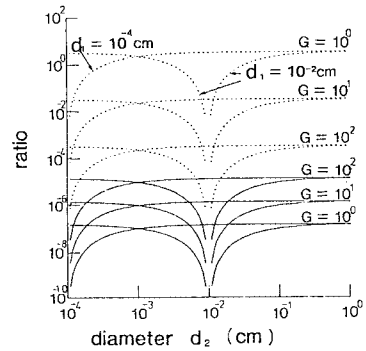


Fig. 1 Comparisons of flocculation controlling factors.

$\sim 0.3 \text{ mm}$ のオーダーをもつ。これ以上の粒子に対しては凝集係数の再検討を行う必要がある。

いま粒子が流体中にランダムに分布し流れに完全に追従すると仮定すれば、 $K(d_1, d_2)$ は、

$$K(d_1, d_2) = \int_S dS \int_0^\infty du u P_r(u) \dots\dots\dots (6)$$

と表わすことができる。ここに $P_r(u)$ は流速 u の確率密度、 S は直径 d_1+d_2 の球面である。 u は被衝突粒子からみた衝突粒子の縦方向相対速度であるから、その挙動は縦方向速度構造関数 $D_r(r)$ (r はずらし距離、 $(d_1+d_2)/2$) によって記述され、Bachelor⁵⁾による

$$D_r(r) = (\varepsilon\nu)^{1/2} \frac{r'^2}{15|1 + (15D_\varepsilon)^{-3/2} r'^{2/3}} \dots\dots\dots (7)$$

が利用できる。ここに D_ε は慣性小領域での $D_r(r)$ に関する普遍定数であり 2.12 程度の値である。 r' は r/η である。式 (6) の $P_r(u)$ を分散 \bar{u}^2 の正規分布で近似すれば

$$\int_0^\infty u P_r(u) du = \left(\frac{\bar{u}^2}{2} \right)^{1/2} \dots\dots\dots (8)$$

であり \bar{u}^2 は $D_r((d_1+d_2)/2)$ であるから

$$K(d_1, d_2) = \frac{4\pi}{\sqrt{30}} (\varepsilon\nu)^{1/4} \frac{d'^3}{(1+0.00558d'^2)^{1/3}} \dots\dots\dots (9)$$

ただし $d' = (d_1+d_2)/2 \eta$ となる。式 (9) は $d' \ll 1, d' \gg 1$ にて

$$K(d_1, d_2) = \begin{cases} 2.29 \left(\frac{\varepsilon}{\nu} \right)^{1/2} \left(\frac{d_1+d_2}{2} \right)^3 & d' \ll 1 \\ 12.94 \varepsilon^{1/3} \left(\frac{d_1+d_2}{2} \right)^{7/3} & d' \gg 1 \end{cases} \dots\dots (10)$$

となる。式 (10) 第 1 式は Saffman らの第 1 解、あるいは Levich の解⁶⁾ とほぼ同型であり⁴⁾、以下では式 (9) を凝集係数として採用する。

注 1) Saffman ら⁴⁾は比例定数を 1.30 としたが、彼らの計算をたどると式 (10) 第 1 式と同じ 2.29 となる。

4. フロックの強度・破壊

フロックの強度・破壊は近年におけるフロック研究の1つの焦点であり多くの研究が行われてきた。しかしその多くは安定粒径，最大粒径などを対象とした準静的なものにとどまり動力学的な検討を行ったものは少ない。それらの中で破壊の選択関数 $P_b(d)$ に関しては Thomas⁷⁾，Argaman⁸⁾，Parker⁹⁾，Glasgow¹⁰⁾，住友ら¹¹⁾，Boadway¹²⁾，あるいは Pandya ら¹³⁾の研究があるが，これらを総し検討してみると $P_b(d)$ としては次のように考えることができる。

$$P_b(d) = f_{b1}(P) \cdot f_{b2}(P, \Sigma) \dots \dots \dots (11)$$

ここに， $f_{b1}(P)$ は粒径 d の粒子破壊に効果的な流体力 P の周波数スケール， $f_{b2}(P, \Sigma)$ は粒径 d によって定まる凝集力 Σ をもった粒子が流体力 P を受けたとき破壊される確率である。上述の研究はいずれも乱流論などから f_{b1} ， f_{b2} の関数型を予測しようとするものであるが，最終的な結果はいずれも

$$P_b(d) = \bar{\alpha}_2 d^{b_n} = \bar{\alpha}_{21} G^{b_n} d^{b_n} \dots \dots \dots (12)$$

によってまとめられ， $\bar{\alpha}_{21}$ ， b_n ， \bar{b}_n は粒子物性によって定まる定数値とされる。 b_n ， \bar{b}_n の推定値としては， $b_n = 2/3$ (Parker⁹⁾，慣性領域) ~ 6.72 (住友ら¹¹⁾)， $\bar{b}_n = -5/3$ (Parker⁹⁾，慣性領域) ~ 5.8 (住友ら¹¹⁾) などが主張されている。

破砕関数 $G(w, w')$ に関しては種々の推測がなされているものの実証的な研究はほとんどない。Quigley¹⁴⁾，Glasgow¹⁵⁾ らは写真撮影による破壊様式の観測を行っているが，可視化を容易にするため特殊な破壊場を設定しておりこの結果を一般場に適用できるかは疑問である。したがって本論文では破砕理論で従来から使用されてきた Table 1 の3関数を採用し，その適合性については下に示す破壊実験により検討を行うものとした。破壊実験は次の手順により行っている。

(i) 所定の G 値，濁質量 (カオリン)，薬注量，および攪拌時間でフロックを形成する。

(ii) 攪拌強度を急増させ，初期粒度分布および所定時間間隔ごとの粒度分布の変化を写真撮影によって観測

Table 1 Breakage functions.

No.	選択関数	破砕関数	最小 ϕ 値 (%)	係数値	備考
1	$\alpha_2 w^{b_n}$	$(w/w')^m$	4.5	$b_n = 1.75$ $m = 1.25$	中島ら ¹⁶⁾
2	$\alpha_2 w^{b_n}$	$1 - (1 - w/w')^m$	8.6	$b_n = 1.75$ $m = 0.85$	Gaudin ¹⁷⁾
3	$\alpha_2 w^{b_n}$	$\frac{1 - e^{-m \frac{w}{w'}}}{1 - e^{-m}}$	16.5	$b_n = 1.75$ $m < 0.001$	Kuwabara ¹⁸⁾

検定に使用したフロックはカオリン 30 mg/l，Al 1.57-6.31 mg/l により構成されている。Al:T 比，形成 G 値，破壊 G 値を変数として12ケースの検定実験を行った

する。なおフロック密度関数も随時測定しておく。

(iii) 破壊卓越場にて成立する次式を6. で述べる部分分割法によって解く。

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial n}{\partial t} \Big|_{br} - P_b(w)n(w) + \int_w^\infty \frac{w'}{w} n(w')P_b(w') \cdot \frac{\partial}{\partial w} G(w, w') dw' \dots \dots \dots (13)$$

ただし，初期粒度分布は(ii)で求めたものを使用する。

(iv) 次式の Φ を適合基準としこれを最小にする破壊関数パラメーター値 α_2 ， b_n ， m を探す。

$$\Phi = \left[\frac{1}{\text{総和数}} \sum_{\text{各実験}} \sum_{\text{各観測時}} \sum_{i=1}^N \frac{|M_{cal}(w_i) - M_{obs}(w_i)|^2}{M_{cal}(w_i)^2} \right]^{1/2} \dots \dots \dots (14)$$

$$M(w_i) = \int_0^{w_i} wn(w)dw, \quad i=1, 2, \dots, N \dots \dots \dots (15)$$

ただし添字 *cal* は計算値，*obs* は観測値を表わす。計算にあたっては m ， b_n を固定し α_2 のみを一次元探索法によって推定する。 α_2 は時間スケールを定めるパラメーターであるから粒度分布の計算経時変化を記憶させておくことによって1回の積分計算から数多くの探索点をとることができる。 m ， b_n に関してはランダムサーチにより定める。Table 1 中の最小 Φ 値は以上の結果得られたものであり $(w/w')^m$ の破砕関数を採用すれば， $b_n = 1.75$ ， $m = 1.25$ となる。 $\bar{\alpha}_2$ は破壊 G 値によって異なり，たとえば Fig. 2 のような関係をもっている。

Fig. 3 は $(w/w')^m$ を破砕関数とし $m = 1.25$ ， $b_n = 1.75$ としたときの式 (13) による破壊実験追跡例である。ここで Fig. 2 の simulation とは7. で示すシミュレーションにて α_2 (質量基準，粒径基準のときは $\bar{\alpha}_2$) を未知パラメーターとしてシミュレーション適合度から求めたものである。

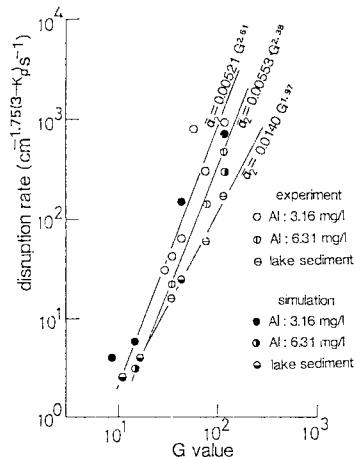


Fig. 2 Disruption rate.

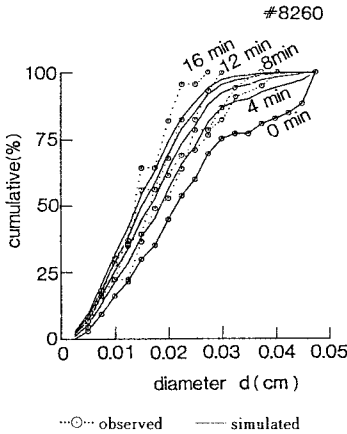


Fig. 3 Floc disruption under strong agitation.

5. 衝突合一確率

衝突合一確率 α が 1 に比べ小さくなる原因としては粒子間の反発ポテンシャルとか流体力学的排除効果、あるいは付着力の低下などが挙げられ、攪拌の継続によっても徐々に減衰していくことが知られている。いま、反発ポテンシャル等についてはひとまず考慮外と仮定する。流体力学的排除効果には粒子形状、透水係数 k などが関与し問題は複雑であるが、楠田ら¹⁸⁾によれば $d_1 > d_2$ 径の粒子が衝突するときの流体力学的な原因による低下率 α_f は、

$$\alpha_f = (1 - \gamma_1) \cdot \left[1 - 2.5 \left(\frac{d_1}{d_1 + d_2} \right)^3 + 1.5 \left(\frac{d_1}{d_1 + d_2} \right)^5 \right] + (1 - \gamma_2) \cdot \left[-2.5 \left(\frac{d_2}{d_1 + d_2} \right)^3 + 1.5 \left(\frac{d_2}{d_1 + d_2} \right)^5 \right] + \gamma_1 \dots (16)$$

とされており、 γ_1, γ_2 はほぼ 0.5¹⁹⁾ といわれる。

次に経時的、あるいは衝突破壊による α の劣化に関しては経験的にも古くから知られ、楠田ら²⁰⁾、桜井²¹⁾はこれを実験的に確かめているが、その原因は明らかではない。LaMer・Healy²²⁾、Van de Ven²³⁾、O'Melia²⁴⁾は架橋型の凝集構造にて長時間の攪拌あるいは強攪拌が凝集力の低下をもたらすような定性的なモデルを推定しており、これらを総合し α の経時変化モデルが参考にするべき要件をまとめてみると次のようになろう。

- (i) 衝突合一確率は粒子表面の活性度に深く関連する。
- (ii) 活性度は攪拌・混合によって低下する。その程度は破壊を起こすような強い攪拌を受けたものほど著しい。
- (iii) 現在のところ、活性度の変化を定量的に予測す

る方法はない。しかし、仮にこれが Smellie・LaMer²⁵⁾ が述べるように活性面の被覆度で表わすことができるならば、この面積の変化を追跡することによって α の変化の様子をある程度説明できるであろう。

以上の推論をもとに本研究では以下に示すような衝突合一確率のモデルを考えた。

- (i) 衝突合一確率 α は流体力学的な効果を示す式 (16) の α_f およびそれ以外の効果を示す α_c の積として表わされる。
- (ii) α_c に係る粒子の活性度は衝突合一からみて意味をもつ表面積 S のうちの“活性”を示す面積 S_a の割合で表わされる。
- (iii) S_1 と S_2 の表面積をもった粒子が合一したときの新生粒子の表面積 S_3 は密度関数が成立するとしては

$$S_3^{\frac{3-k_0}{2}} = S_1^{\frac{3-k_0}{2}} + S_2^{\frac{3-k_0}{2}} \dots (17)$$

となる。合一による表面の再配置等によって活性面の損耗が予想されるからその割合を $\beta_1 (\leq 1)$ とすれば

$$S_3^{\frac{3-k_0}{2}} = \beta_1 \left(S_1^{\frac{3-k_0}{2}} + S_2^{\frac{3-k_0}{2}} \right) \dots (18)$$

となる。

- (iv) せん断力、破壊の作用は活性度低下をもたらす。その方法としては O'Melia²⁴⁾、Van de Ven²³⁾ などの提案するタイプが考えられるが、そのいずれにせよ流体力と粒子の関連という点から考えて粒子破壊と多くの類似性があると想像され破壊選択関数 $P_o(w)$ と同じ表現によって劣化速度のモデル化が行えるものとする。

- v) 以上の仮定から w の粒子のもつ活性面積 $S_a(w)$ は

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} (S_a(w)n(w)) &= \frac{\beta_1}{2} \int_0^w dw' \alpha(w-w', w') \\ &\cdot K(w-w', w') n(w') n(w-w') \\ &\cdot \left[S_a^{\frac{3-k_0}{2}}(w-w') + S_a^{\frac{3-k_0}{2}}(w') \right]^{\frac{2}{3-k_0}} \\ &- \int_0^\infty dw' \alpha(w, w') K(w, w') n(w') n(w) \\ &\cdot S_a(w) - (1 + \beta_2) P_o(w) n(w) S_a(w) \\ &+ \int_w^\infty dw' P_o(w') n(w') \\ &\cdot S_a(w') \frac{\partial}{\partial w} G(w, w') \dots (19) \end{aligned}$$

に従う。ここに β_1, β_2 は不活性化速度を示すパラメーターであり $\alpha(w, w')$ は $S(w)$ の被覆度から $\bar{\alpha}_c$ を定数として

$$\alpha(w, w') = \alpha_f(w, w') \cdot \bar{\alpha}_c \cdot \frac{S_a(w)}{S(w)} \cdot \frac{S_a(w')}{S(w')} \dots (20)$$

と仮定した。未知係数である $\bar{\alpha}_c, \beta_1, \beta_2$ は計算粒度分布と実測分布を比較し決定する。

6. 計算手法

式(2), (19)を解くには数値計算に頼る必要がある。その手法選択にあたっては広範囲粒度を手際よく処理する方法が望まれるが、本研究では重み付き残差法の一つである部分分割法を使用した。これは対象とする w 軸の範囲を N 区分し (Fig. 4), 区間内の粒子平均濃度 C_l ($l = 1, 2, \dots, N$) を未知数としたうえで GDE から C_l に関

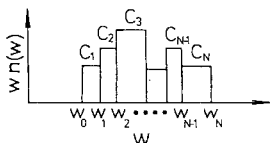


Fig. 4 Sectional method.

する物質収支式を導いたものである。すなわち

$$C_l = \frac{1}{w_l - w_{l-1}} \int_{w_{l-1}}^{w_l} wn(w)dw, \quad l=1,2,\dots,N \dots (21)$$

とし式(2), (3)に w を乗じ $[w_{l-1}, w_l]$ にて積分すると

$$\begin{aligned} (w_l - w_{l-1}) \frac{dC_l}{dt} &= \frac{1}{2} \int_{w_{l-1}}^{w_l} dw w \int_0^w dw' \alpha K(w', w - w') \\ &\cdot n(w)n(w-w') - \int_{w_{l-1}}^{w_l} dw wn(w) \\ &\cdot \int_0^w dw' \alpha K(w', w)n(w') - \int_{w_{l-1}}^{w_l} dw wn(w) \\ &\cdot P_b(w) + \int_{w_{l-1}}^{w_l} dw \int_w^\infty dw' n(w') \\ &\cdot w' P_b(w') \frac{\partial}{\partial w} G(w, w') \dots (22) \end{aligned}$$

となる。式(22)右辺の積分を実行するには $n(w)$ の形状が問題となるが、最も簡単なものとして²⁶⁾

$$n(w) = \frac{C_l}{w}, \quad w_{l-1} \leq w < w_l \dots (23)$$

と仮定すれば

$$\begin{aligned} (w_l - w_{l-1}) \frac{dC_l}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{i,j,l} C_i C_j \iint \alpha \frac{w' + w''}{w' w''} \\ &\cdot K(w', w'') dw' dw'' \\ &- C_l \sum_{i=1}^N C_i \int_{w_{l-1}}^{w_l} dw'' \int_{w_{l-1}}^{w_i} \alpha \frac{K(w', w'')}{w'} dw' \\ &- C_l \int_{w_{l-1}}^{w_l} P_b(w) G(w_{l-1}, w') dw' + \sum_{i=1}^N C_i \int_{w_{l-1}}^{w_i} dw' \\ &\cdot P_b(w') [G(w_i, w') - G(w_{l-1}, w')] \dots (24) \end{aligned}$$

となる。ここに $A(i, j, l)$ とは $w_{i-1} \leq w' < w_i, w_{j-1} \leq w'' < w_j$, かつ $w_{l-1} \leq w' + w'' < w_l$ によって規定される領域であり I_l とは $A(i, j, l)$ が空でない (i, j) の組合せを示す。式(24)は凝集・破壊による区間 $[w_{l-1}, w_l]$ 内における固相質量の変化を示しているが、これらの作用は全固相質量を変化させるものではない。したがって

この条件が満足されているかを検討するために式(24)を l について加え合わせてみると次のようになる。

$$\begin{aligned} \sum_{l=1}^N (w_l - w_{l-1}) \frac{dC_l}{dt} &= - \sum_{i,j,l} C_i C_j \iint \alpha \frac{K(w', w'')}{w' w''} \\ &\cdot dw' dw'' - \sum_{i=1}^N C_i \int_{w_{i-1}}^{w_i} P_b(w') G(w_0, w') dw' \dots (25) \end{aligned}$$

ただし $B(i, j)$ とは $w_i \leq w' < w_{i+1}, w_j \leq w'' < w_{j+1}$ かつ $w_N \leq w' + w''$ によって規定される領域であり I_{N+1} とは $B(i, j)$ が空でない (i, j) の組合せを示す。式(25)は凝集・破壊によって粒度区間 $[w_0, w_N]$ から漏出する質量を表わしており、粒度範囲の設定にあたっては式(25)右辺がほとんど0となるように注意する必要がある。

式(24)の総和計算および $A(i, j, l)$ の積分計算の難易は粒度の分割法によって左右されるが、たとえば

$$w_i = 2w_{i-1}, \quad i=1,2,\dots,N \dots (26)$$

のような区分を行うと比較的すっきりした形となる。すなわち、この場合には

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \sum_{i,j,l} \iint dw' dw'' &= \sum_{i=1}^{l-1} \int_{w_{i-1}}^{w_i} dw' \int_{w_{l-1}}^{w_i} dw'' \\ &+ \sum_{i=1}^{l-2} \int_{w_{i-1}}^{w_i} dw' \int_{w_{l-1}-w'}^{w_{l-1}} dw'' \\ &+ \frac{1}{2} \int_{w_{l-2}}^{w_{l-1}} dw' \int_{w_{l-2}}^{w_{l-1}} dw'' \dots (27) \end{aligned}$$

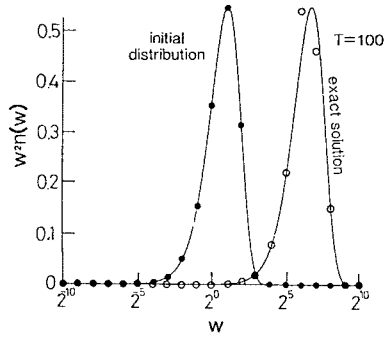
となりシステマティックな積分計算が可能となる。式(27)右辺の個々の積分、あるいは式(24)のその他の積分は解析的に、あるいは数値積分法(適応型シンプソン法)によって行った。計算では各区間内における α の変化は小さいものとして幾何平均粒度における値で代替している。式(19)も同様な方法によって離散化し得る。本論文では各区間内での $S_a(w)$ の分布を

$$S_a(w) = \frac{S_{al}}{n(w)} = \frac{w S_{al}}{C_l}, \quad w_{l-1} \leq w < w_l \dots (28)$$

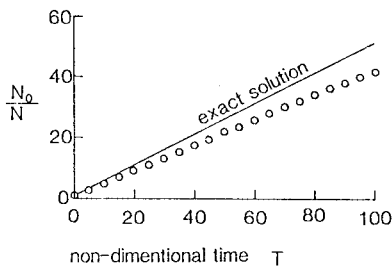
なる S_{al} によって表現し、式(19)から S_{al} に関する N 元連立常微方程式を導いた。したがってモデル全体としては C_l, S_{al} ($l=1, 2, \dots, N$) を従属変数とする $2N$ 元連立常微分方程式となる。

本手法により粒度変化計算を良好に行い得るかは定かではない。しかるに $\alpha=1$, かつ $K(w', w'')$ あるいは $B(w', w'')$ が簡単な形をしており解析解を得ることが可能である場合にはこれと数値解とを比較することによって計算方法適否のめどを得ることが可能であろう。

Fig. 5はその1つの例であり、破壊なし、 $K(w', w'')=1$ (一定 K) とした場合の解の比較である。図中 T は無次元化時間 ($N_0 K t$, N_0 : 初期粒子数) であり Fig. 5(a) には分布の変化, Fig. 5(b) には全粒子数の変化を示している。他の場合においてもほぼ同様な結果を得ており、



(a) Change of distribution



(b) Change of particle number

Fig. 5 Constant coagulation coefficient.

これらの適合性からみてここに示した手法は本研究の目的に対し使用に耐え得るものと判断した。

7. フロック粒度変化の追跡

2.~6. に述べた各検討を総合化しカオリン・バンドフロックの粒度変化追跡シミュレーションを行うとともに室内実験結果との比較を行いシミュレーション全体としての適用性を検討した。使用した実験水槽は Fig. 6 に示すアクリル製容量 110 l の円筒型回転水槽であり、固定した 4 枚の攪拌翼を挿入することによって槽内混合を行っている。実験に使用した濁質はカオリンであり、これに凝集剤として硫酸アルミニウム、pH 調整剤として水酸化ナトリウムを注入した。槽内エネルギー逸散率の推定は攪拌翼固定に必要なトルクから求めたが、これとは別個に熱膜流速計による測定値の空間的積分によっても求めており、両者の比である 2.16 (G 値では 1.47) によって前者の値を除したものを公称 ϵ 値 (G 値) とした。なお ϵ の空間変動は 2 オーダー以上にも広がりその補正が必要であるが、ここでは考慮しない。また密度関数は混合に伴い変化することが知られているから本実験においても頻繁に測定を行いそれらを時間的に線形内挿したものを使用した。

計算は (i) β_1, β_2 の探索、(ii) 実測値・計算値の比較・検討、(iii) 感度解析・モデルで算出された粒度

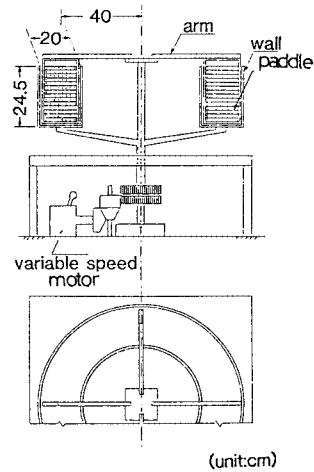


Fig. 6 Experimental flocculator.

構造の解析、の各段階について行われた。使用した計算区分 (N) は 21 であり、2 を底とする等比級数によって分割している。初期粒度分布としては、(i) 1 強度のみの攪拌 (急攪・緩攪の別なし) のときには薬注直前に観測した粒度分布を、(ii) 2 段階攪拌のときには緩攪開始時に観測した粒度分布を用いた。 $\bar{\alpha}_c$ は急攪開始時に全粒度にわたって 1 としている。したがって 2 段階攪拌の場合でも計算は急攪開始時からスタートし、緩攪開始時の“活性度”の算出を行っている。Fig. 7(a) は計算・観測の $G=14.7$ (1/s) のときの体積 10, 50, 90% 径の変化を示したものである。横軸は緩攪開始後の経過時間である。また、Fig. 7(b) は同じケースでの粒度分布の変化を示したものである。さらに、Table 2 は薬注量、 G 値を変化させたときの適合度の状況を示しており、比較的良好な適合を示すといつてよい。なお、これらの例の β_1, β_2 はそれぞれ 0.9875, 1.30 であり全ケースについて一定とした。また破壊の選択関数に関するパラメーター α_2 は各ケースについて別々に定めてお

Table 2 Comparisons of simulation and experiment.

No.	Al (mg/l)	G (1/s)	$\bar{\alpha}_c$ (cgs)	検定残差 (%)
5 120	3.16	14.7	6	8.6
5 180	1.57	14.7	11	16.2
5 190	6.31	14.7	3	18.3
5 200	3.16	8.7	4	9.0
7 290	3.16	43.4	150	19.5
6 110	3.16	114	800	16.1
10 160	1.57	114	1500	9.4
10 15	6.31	114	300	25.1
11 280	2.56	43.4	25	16.5
11 262	2.56	16.5	4	18.7
11 260	2.56	11.0	2.5	17.6

検定残差=実験、計算の累積粒度分布の最大絶対偏差の根 2 乗平均を示したものである。No. 5 120~1 015 はカオリン 30 mg/l を濁質とし、No. 11 280~11 260 は湖泥 5.6 mg/l にアルギン酸ソーダ 2 mg/l を加えている。

り、これと4.の実験により求めた値の比較はすでにFig.2に示している。

8. 粒度分布変化の構造

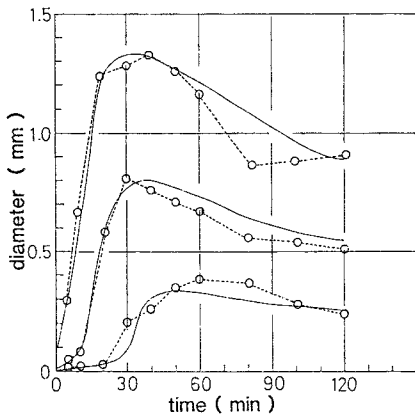
Fig.7にもみられるように粒度分布は攪拌に伴って大きく変化する。大部分の領域にて凝集作用が卓越するが大粒子側ではその他に破壊作用も卓越し、両作用のバランスは表面活性の低下等の影響を受け時々刻々変化するから結果的には複雑な経路をたどる。本節では数値計算の結果から粒度分布の形成・推移に凝集作用・破壊作用がどのような影響を及ぼしているかを検討する。説明の便のために式(2),(3)から導出される固相質量濃度 $C(w) (= wn(w))$ の基礎式の各項をそれぞれ CV1, CV2, BV2, BV1 と名付けておく。

$$\frac{dC(w)}{dt} = CV1 - CV2 - BV2 + BV1 \dots \dots \dots (29)$$

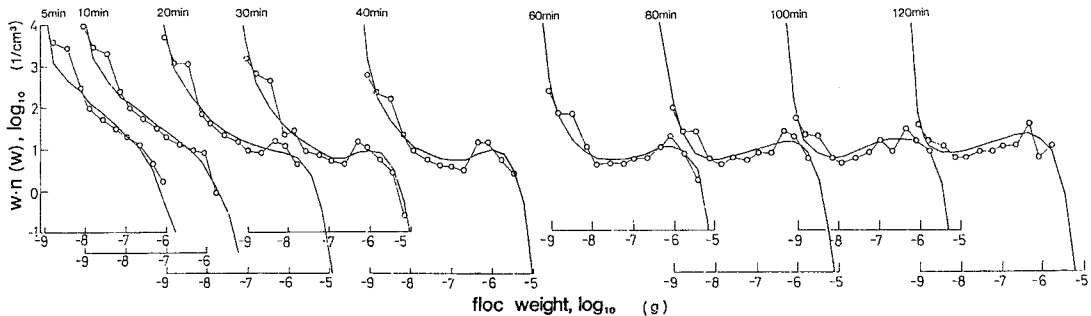
$$CV1 = \frac{1}{2} \int_0^w \alpha(w', w-w') K(w', w-w') \cdot wn(w')n(w-w')dw'$$

$$CV2 = C(w) \int_0^\infty \alpha(w, w') K(w, w') n(w') dw'$$

$$BV2 = P_b(w) C(w)$$



(a) 10, 50, 90% diameter



(b) distribution

Fig.7 Comparison of simulation and experiment (#5120).

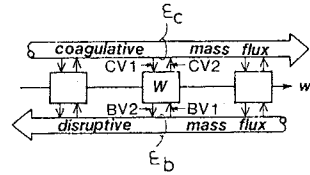


Fig.8 Schematic diagram of flocculation and disruption.

$$BV1 = \int_w^\infty C(w') P_b(w') \frac{\partial}{\partial w} G(w, w') dw'$$

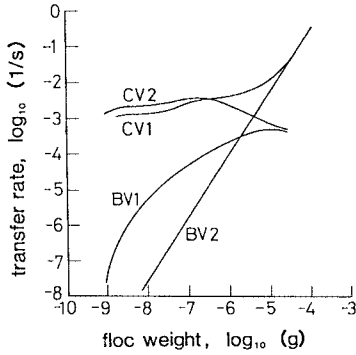
これらの項はそれぞれ CV1:凝集によって小粒子が w の粒子に, CV2:凝集によって w の粒子がより大粒子に, BV2:破壊によって w の粒子が小粒子に, BV1:破壊によって大粒子が w の粒子になる粒度1単位当たりの質量フラックスを示したものであり, これを使用すれば粒子の凝集破壊過程は Fig.8 のように模式化できる。

図中の ϵ_c, ϵ_b は凝集, 破壊による総質量フラックスを示し, それぞれ

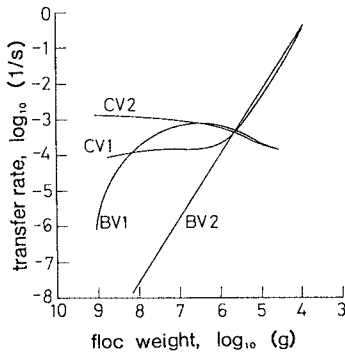
$$\begin{aligned} \epsilon_c = & \int_w^\infty \frac{\partial C}{\partial t} \Big|_{\text{coax}} dw = \int_0^w n(w') dw' \\ & \cdot \int_{w-w'}^w (w'+w'') \alpha(w', w'') K(w', w'') n(w'') dw'' \\ & + \int_w^\infty n(w') dw' \int_0^w w'' \alpha(w', w'') K(w', w'') \\ & \cdot n(w'') dw'' \dots \dots \dots (30) \end{aligned}$$

$$\epsilon_b = \int_0^\infty \frac{\partial C}{\partial t} \Big|_{br} dw = \int_w^\infty P_b(w') G(w, w') dw' \dots \dots (31)$$

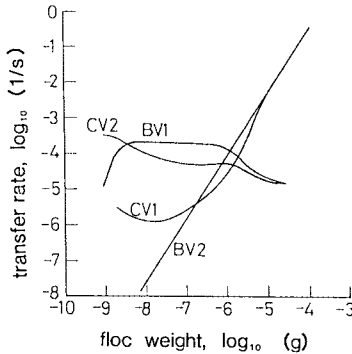
で表わされるものである。特に ϵ_c は Friedlander²⁷⁾ が導入し “coagulative mass flux” と称されたものである。これらの諸量に関連し, まず Fig.9 は Fig.7 と同じケース (#5120) にて計算した CV1, CV2, ... を $C(w)$ で除し変化速度 (時定数の逆数) 表示したものである。Fig.9(a) は緩攪開始後10分の状態であるが, ほとんどの粒度において CV (凝集速度) は BV (破壊速度) を上回る。また大粒子側においては $CV1 > CV2$, 小粒子



(a) After 10 min



(b) After 40 min



(c) After 120 min

Fig. 9 Transfer rate of mass flux (#5 120).

側ではその逆であるが、これは凝集によって小粒子側の固相質量が大粒子側に移行していることを意味する。次に大粒子側の粒度がほぼピークとなる40分後 (Fig. 9 (b)) では大粒子側にて CV 1≃BV 2, 中粒子にて CV 2≃BV 1 が成立する。すなわち凝集・破壊の速度はほとんどつり合い部分的な平衡が成立しているものと考えられる。小粒子側では依然として CV 2 が卓越する領域が存在する。粒度縮小期である120分後では大部分の領域において BV が CV を上回っている。Fig. 10 はやはり同じケースの ϵ_c , ϵ_b を示したものであり、緩攪10分

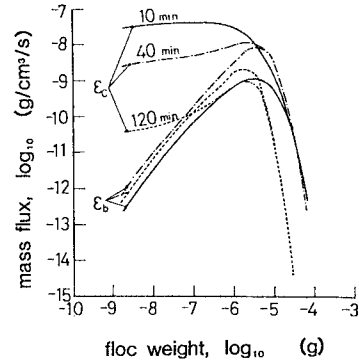


Fig. 10 Coagulative and disruptive mass flux (#5 120).

後に示された高 ϵ_c 領域が攪拌とともに低下している。 ϵ_b は40分後にピークとなっており、これらから長時間攪拌によって凝集、破壊作用いずれもが低下することが推測される。緩攪10分後にみられる ϵ_c が一定であり $\epsilon_c \gg \epsilon_b$ である領域の存在は Friedlander が推測した“動的平衡状態”の存在を想像させるが、この領域での“定常解”は次元解析から

$$n(w) \propto \left(\frac{\epsilon_c}{G}\right)^{1/2} w^{-\frac{12-3K\alpha}{23-4K\alpha}} \dots \dots \dots (32)$$

となる。ここで、 α は w によらず一定であり粒子径は η (ミクロスケール) より小さいと仮定している。 $K\rho$ を1とすると w に対するベキは $-9/4$ ($n(d)$ 表示では d に対し $-23/4$) となり Friedlander の求めた -2 ($n(d)$ 表示で -4) とは若干異なった値となる。なお α の粒度に対する依存性を考慮に入れると粒度に対するベキはより小さくなる (絶対値で) と思われる。Fig. 7(b) の緩攪開始後10分での粒度分布は式 (32) と矛盾するものではないが上に述べた取り扱いの妥当性、一般性を示すにはより多くの検証を重ねる必要がある。また緩攪開始後30分以降 $wn(w)$ 分布の $w=10^{-7} \sim 10^{-6}g$ 付近にみられる右上りの傾き (Fig. 7(b)) が CV 2≃BV 1, $m > 1$ のとき発生することは半解析的にも示し得るがこの現象についてもその妥当性、一般性を示すにはより多くの検証が必要であろう。

9. 結 語

本論文は水中の浮遊性物質の挙動のうち特に凝集・破壊の動力学に焦点をあて数値解析的手法の開発およびそれによる粒度分布変化構造の検討を行ったものである。その主な成果としては

- (i) GDE を中心に比較的広範囲の粒度粒子の凝集破壊プロセスを統一的にモデル化しそのシミュレーション手法の確立を図ったことにある。その他,
- (ii) 凝集係数の推定,

(iii) 破壊プロセスのモデル化およびその定量化,

(iv) 付着衝突係数のモデル化

などにいくつかの工夫がみられるが、これらのモデルの妥当性についてはさらに検討が必要な点もある。その他本論文では密度関数を所与としたシミュレーションを行っているが、フロキュレーション動力学の立場からはその推移自体がきわめて重要な意義を占めていると考えられ、以上の点を含め今後の研究に期待するところが大きい。

最後に、本研究の遂行にあたっては京都大学工学部住友 恒教授の指導を受け、さらに田中 誠氏(現・川崎製鉄)の実験助力を得た。感謝の意を表する次第である。

参 考 文 献

- 1) Lerman, A. : Geochemical processes, Water and Sediment Environments, John Wiley & Sons, New York, 1979.
- 2) Müller, V.H. : Zur allegemenen Theorie der raschen Koagulation, Die Koagulation von Stäbchen-und Blättchen-Kolloiden ; die Theorie beliebig polydisperser Systeme und der Strömungskoagulation. Kolloidchemische Beihefte, 27, pp.223~250, 1928.
- 3) Bass, L. : Zur Theorie der Mahlvorgänge, Z. Angew. Math. Phys., 5, pp.283~292, 1954.
- 4) Saffman, P.G. and Turner, J.S. : On the collision of drops in turbulent clouds, J. Fluid Mech., 1, pp.16~30, 1956.
- 5) Batchelor, G.K. : Pressure fluctuations in isotropic turbulence, Proc. Camb. Phil. Soc., 47, pp.359~374, 1951.
- 6) Levich, V.G. : Physicochemical Hydrodynamics, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1962.
- 7) Thomas, D.G. : Turbulent disruption of flocs in small particle size suspension, AI ChE.J., 10 (4), pp.517~523, 1964.
- 8) Argaman, Y. and Kaufman, W.J. : Turbulence in orthokinetic flocculation, Sanitary Engineering Research Laboratory Report No.68-5, Univ. of California, Berkeley, 1968.
- 9) Parker, D.S., Kaufman, W.J. and Jenkins, D. : Floc breakup in turbulent flocculation processes, Proc. ASCE Sanitary Eng.Div., 98 (SA1), pp.79~99, 1972.
- 10) Glasgow, L.A. : Particle deaggregation phenomena, Ph.D. Thesis, Univ. of Missouri, Columbia, 1977.
- 11) 住友 恒・宇治貞宏・平井雄二 : フロックの破壊に関する基礎的研究, 京都大学工学部衛生工学教室, 1978.
- 12) Boadway, J.D. : Dynamics of growth and breakage of alum floc in presence of fluid shear, Proc. ASCE, Environ. Eng. Div., 104 (EE5), pp.901~915, 1978.
- 13) Pandya, J.D. and Spielman, L.A. : Floc breakage in agitated suspensions : Theory and data processing strategy, J. Colloid Interface Sci., 90 (2), pp.517~531, 1982.
- 14) Quigley, J.E. and Spielman, L.A. : Strength properties of liquid borne flocs, Motion picture, Project No.A-036-DEL, Water Resources Center, Univ. of Delaware, 1977.
- 15) Glasgow, L.A. and Hsu, J.P. : An experimental study of floc strength, AI ChE.J., 28 (5), pp.779~785, 1982.
- 16) 中島耀二・田中達夫 : 粉砕方程式の解析解について, 粉砕, 19, pp.2~11, 1974.
- 17) Gaudin, A.M. and Meloy, T.P. : Model and a comminution distribution equation for single fracture, AIME Transactions, 223, pp.40~43, 1962.
- 18) 粟谷陽一・楠田哲也 : フロックの衝突効率について(II) — 剪断流中の場合 —, 九大工学集報, 43 (1), pp.11~15, 1970.
- 19) 楠田哲也 : フロックの透水性と衝突効率に及ぼす影響, 水道協会雑誌, 462, pp.2~9, 1973
- 20) 古賀憲一・粟谷陽一・楠田哲也 : フロックの基礎的性質に及ぼす攪拌条件の影響, 水道協会雑誌, 535, pp.39~45, 1979.
- 21) 桜井正明・原納淑郎 : ミクロセルロース分散系のフロック成長過程, 化学工学論文集, 6 (3), pp.281~287, 1980.
- 22) LaMer, V.K. and Healy, T.W. : Adsorption-flocculation reactions of macromolecules at the solid-liquid interface, Rev. Pure App. Chem., 13, pp.112~132, 1963.
- 23) Van de Ven, T.G.M. : Effects of polymer bridging on selective shear flocculation, J. Colloid Interface Sci., 81 (1), pp.290~291, 1981.
- 24) O'Melia, C.R. : A review of the coagulation process, Public Works, 100, pp.87~98, 1969.
- 25) Smellie, R.H. and LaMer, V.K. : Flocculation, subsidence, and filtration of phosphate slimes, VI, a quantitative theory of filtration of flocculated suspensions, J. Colloid Sci., 13, pp.589~599, 1958.
- 26) Gelbard, F., Tambour, Y. and Seinfeld, J.H. : Sectional representations for simulating aerosol dynamics, J. Colloid Interface Sci., 76 (2), pp.541~556, 1980.
- 27) Friedlander, S.K. : Similarity considerations for the particle-size spectrum of a coagulating, sedimenting aerosol. J. Meteor., 17, pp.479~483, 1960.
- 28) Tanbo, N. and Watanabe, Y. : Physical aspect of flocculation process I, Fundamental treatise, Water Res., 13, pp.429~439, 1979.
- 29) 松尾友矩 : フロックの破壊機構と強度に関する研究, 土木学会論文報告集, 229, pp.31~39, 1974.

(1984.4.7・受付)