

流動層型生物膜反応器内における 軸方向流体混合特性に関する一考察

CHARACTERISTICS OF LONGITUDINAL DISPERSION OF LIQUID IN FLUIDIZED BED BIOFILM REACTOR

大橋晶良*・桃井清至**・原田秀樹**

By Akiyoshi OHHASHI, Kiyoshi MOMONOI and Hideki HARADA

The appropriate description of fluid flow pattern in fluidized bed biofilm reactor is necessary for the prediction of its system performance. The experimental correlation equation of the longitudinal dispersion coefficient was estimated by the tracer impulse response method using the various particles which are similar in physical properties to the bioparticles, that is, biofilms coated onto growth supporting carriers. The presented correlation equation between longitudinal dispersion coefficient, void fraction and particle diameter was obtained by introducing well-known Taylor's and Kozeny's models. It is proved that the presented correlation is more valid within the range of particle Reynolds number used in this experiment, compared with the prediction by Krishnaswamy's and Chung's experimental correlations.

1. はじめに

流動層型生物膜反応器は、高濃度の生物を維持でき、このため高い処理性能を有した経済性に優れた廃水処理装置である。この反応器の処理性能を予測・評価するには、生物膜内の拡散による物質移動抵抗の定量化および粒子の流動化現象を把握するとともに、反応器内の流体混合特性を定量化する必要がある。われわれは、これらの現象を考慮して、流動層型生物膜反応器の非定常状態でのシステムパフォーマンスを予測するモデルの構築とその検証を既報¹⁾で報告した。しかし、既報のモデル中の流体混合特性を記述するパラメーターである軸方向分散係数は、測定しなければならなかった。

そこで本研究は、本モデルを完全なものとするため、軸方向分散係数に及ぼす粒子物理性状（粒径・密度）と空間率の影響を実際の廃水処理装置に適した充填粒子の物性に近い種々の粒子群を用いたトレーサー実験より定量化し、実験的相関式の提示を目的とした。

2. 実験方法および条件

実験装置を Fig. 1 に示す。反応器としては、内径 3 cm、塔長 4 m のアクリル製円塔カラムを用い、下部にはテーパーが取り付けてある。ポンプとカラム間には、サージタンクを設けることにより脈流を防止した。水温は恒温槽により 25 °C に制御した。実験はインパルス応答法を行い、トレーサー液は NaCl (10 %) 溶液にメタノールを加え比重を 1.000 に調整したものを使用した。流動層高は、流速および粒子充填量を種々変化させることにより約 170 cm ~ 390 cm の範囲内で行った。

充填粒子は、Table 1 に示した 9 種類の粒子を使用した。バイオパーティクル（球状活性炭 + 付着生物膜）は、脱窒プロセスに適用した流動層内で NaNO₃、メタノール系で添加し、担体の球状活性炭上に付着増殖させたものである。粒径は、実体顕微鏡写真からサンプル数 100 個の直径を測定し調和平均径をもって粒径とした。粒子密度は、ガラス球に対しては比重試験方法で測定し、球状活性炭、クレイボール、バイオパーティクルは、細孔があるため粒子沈降試験より間接的に求めた。

空間率（単位反応器体積中に粒子外部空間の占める割合） ϵ は、粒子充填量と流動層高の関係から求められるが、バイオパーティクルについては、充填量が定量でき

* 正会員 工修 呉工業高等専門学校助手 土木工学科
(〒737 呉市阿賀南2-2-11)

** 正会員 工博 長岡技術科学大学助教授 工学部
(〒949-54 長岡市上富岡町1603-1)

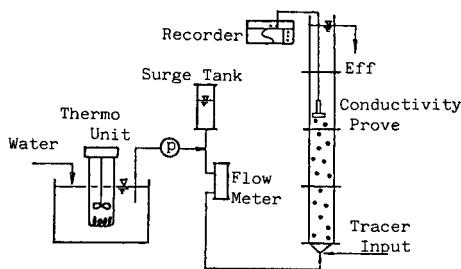


Fig. 1 Schematics of experimental apparatus.

Table 1 Physical properties of particles.

Particles	ρ_p (g/cm ³)	d_p (mm)	Symbols
Glass Beads	2.528	0.902	●
Glass Beads	2.528	0.506	○
Glass Beads	2.528	0.389	●
Glass Beads	2.528	0.203	○
Activated Carbons	1.316	0.329	△
Bioparticles	1.027	0.985	□
Bioparticles	1.012	1.487	■
Clay Balls	1.243	1.488	▽
Clay Balls	1.274	1.911	▼

ないため、次の方法によって求めた。

一般的に、空間率 ϵ (−) と空塔速度 u (cm/s) の関係は次式で表わされる²⁾。

$$u/u_t = \epsilon^n \quad (1)$$

ここに、 u_t ：粒子沈降速度 (cm/s), n ：指数定数 (−) である。式 (1) の空間率 ϵ を流動層高 L (cm) と仮想層高 L_0 (cm) で書き直すと、

$$\frac{u}{u_t} = \left(\frac{L - L_0}{L} \right)^n \quad (2)$$

粒子沈降速度 u_t を沈降試験から求め、また空塔速度 u と流動層高 L との関係を実測し、式 (2) を使用して非線形最小二乗法により仮想層高 L_0 と指数定数 n を評価する。

Fig. 2 に、粒径 $d_p=0.1487$ cm のバイオパーティクル粒子に関して式 (2) の関係を示した。図より高い相関関係が観察され、精度よく仮想層高 L_0 と指数定数 n を評価することができ、空間率 ϵ を推定することができる。

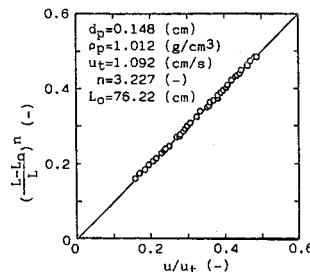
3. 結果と考察

(1) 流動層内の流体混合特性評価

流動層型生物膜反応器が塔径に比べ塔長がかなり長く廃水の循環をしない場合には、物質収支をとると式 (3) のような分散モデルで表わされる。

$$\frac{\partial s}{\partial t} = D_z \frac{\partial^2 s}{\partial z^2} - \frac{u}{\epsilon} \frac{\partial s}{\partial z} \quad (3)$$

ここに、 s ：基質濃度 (mg/l), t ：時間 (s), D_z ：軸方向分散係数 (cm²/s), z ：鉛直方向座標 (cm) である。

Fig. 2 Estimation of n and L_0 equation (2).

まず、流動層において、摩擦損失で採用されている Kozeny の模型³⁾を分散にも適用する。この模型は流動層内を全表面積および全空間が相等しい細かい平行な円管の集まりと考えたものであり、この仮想の管径 d_c (cm) は次式で表わされる。

$$d_c = \frac{2d_p \cdot \epsilon}{3(1-\epsilon)} \quad (4)$$

ここに、 d_p ：粒径 (cm) である。流動層内が円管の集まりと考えられることにより、次式の Taylor (たとえば文献 4)) の円管内の軸方向分散係数 D^* (cm²/s) を導入する。

$$D^* = 10.1 a \cdot u_* \quad (5)$$

ここに、 a ：円管の半径 (cm), u_* ：摩擦速度 (cm/s) である。すなわち、仮想管径 d_c の半径を式 (5) の円管の半径 a に代入する。流動層内の摩擦速度 u_* は、粒子沈降と粒子表面に働くせん断力のつり合いから、次式で与えられる。

$$u_* = \sqrt{\tau_0 / \rho_F} = \sqrt{d_p (\rho_p - \rho_F) \cdot g / 6\rho_F} \quad (6)$$

ここに、 τ_0 ：流体せん断力 (g/cm·s²), ρ_F ：流体密度 (g/cm³), ρ_p ：粒子密度 (g/cm³), g ：重力加速度 (cm/s²) である。すなわち、円管内の Taylor の解析と Kozeny の模型とを組み合わせることにより、流動層における軸方向分散係数 D (cm²/s) は次式で表現できる。

$$D = 10.1 \frac{d_p \cdot \epsilon}{3(1-\epsilon)} \sqrt{d_p (\rho_p - \rho_F) g / 6\rho_F} \quad (7)$$

(2) 軸方向分散係数 D_z の実験的相関式

トレーサー応答実験より、式 (3) の分散モデルを適用して軸方向分散係数 D_z を評価することができる。この D_z と Taylor の解析と Kozeny の模型を導入した式 (7) との比に及ぼす空間率 ϵ の影響を Fig. 3 に示す。固定層 ($\epsilon=0.4$ 付近) と空塔 ($\epsilon=1$) 付近で D_z/D は 1 に近づく傾向が観察される。空塔状態では、流動層内の粒子が存在しなく円管であるために、Taylor の解析が適用でき、 D_z/D は当然 1 に近づくことが予想される。また粒子の動きがない固定層では、実験値 D_z が式 (7) の分散係数に近づくことを示している。しかし、各粒子とも空間率 $\epsilon=0.65$ 付近で D_z/D が最大値をもつ傾向

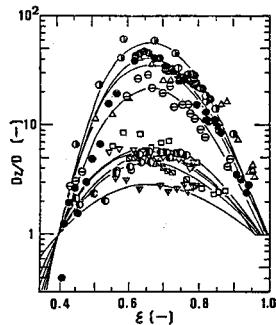


Fig. 3 Relationship between D_z/D and void fraction ϵ .
Symbols are indicated in Table 1.

がみられ、実際の流動化状態にある反応器内の分散現象を式(7)の軸方向分散係数 D では表現できないことを示している。この D_z と D の偏奇の主な原因として粒子の挙動が考えられる。空間率 ϵ の増加とともに粒子の動きが活発となるため D_z と D の偏奇の程度は大きくなり、さらに、空間率 ϵ が増加すると粒子群は希薄な状態となり、粒子間の距離が増加するのに対して個々の粒子の動きの影響度は減少し、 D_z と D の偏奇は減少するものと思われる。

各粒子について、 $\log(D_z/D)$ と空間率 ϵ の関係に三次式を仮定し最小二乗法を行った。ただし、固定層付近での空間率 $\epsilon=0.4$ と、仮想管径 d_c と塔径 d_t (cm) が一致する空間率 $\epsilon=3d_t/(2d_p+3d_t)$ のとき、 D_z と D が一致する、つまり $D_z/D=1$ という拘束条件を付け加えた。Taylor の解析より、 $\epsilon=1$ のとき $D_z/D=1$ とすべきであるが、式(4)において $\epsilon=1$ の場合、仮想管径 d_c が無限大となり矛盾するため、仮想管径 d_c と塔径 d_t が一致する場合に $D_z/D=1$ とした方が妥当と考えられる。最小二乗法の結果、 D_z/D が最大値 (D_z/D)_{max} となる空間率 ϵ の平均値は 0.66 と評価され、標準偏差は 0.03 であった。

Fig. 4 に、(D_z/D)_{max} と粒径 d_p の関係を示す。両対数紙において (D_z/D)_{max} は粒径 d_p と負の線形関係が認められ、回帰直線は次式となった。

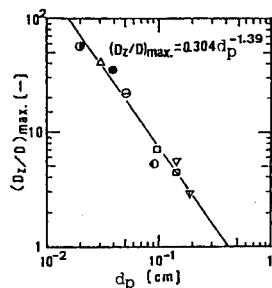


Fig. 4 Relationship between $(D_z/D)_{\text{max.}}$ and particle diameter d_p . Symbols are indicated in Table 1.

$$(D_z/D)_{\text{max.}} = 0.304 d_p^{-1.39} \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

上式は、粒径 d_p の増加とともに D_z と D の偏奇が減少することを示している。

これより、流動層内の軸方向分散係数 D_z は、式(9)のような実験的相関式として整理することができる。

$$D_z = D | 0.304 d_p^{-1.39} |^{f(\epsilon)} \quad \dots \dots \dots \quad (9)$$

ここに、

$$f(\epsilon) = \frac{(\epsilon - \epsilon_1)(\epsilon - \epsilon_2)(\epsilon - \epsilon_4)}{(\epsilon_3 - \epsilon_1)(\epsilon_3 - \epsilon_2)(\epsilon_3 - \epsilon_4)}$$

$$\epsilon_1 = 0.4, \quad \epsilon_3 = 0.66$$

$$\epsilon_2 = \frac{3d_t}{2d_p + 3d_t}, \quad \epsilon_4 = \frac{\epsilon_3(2\epsilon_1 + 2\epsilon_2 - 3\epsilon_3) - \epsilon_1 \cdot \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2 - 2\epsilon_3}$$

式(9)の右辺の指指数項 $|0.304 d_p^{-1.39}|^{f(\epsilon)}$ は、Taylor の解析と Kozeny の模型を適用して求めた軸方向分散係数 D と実験値 D_z の偏奇の大きさを表わしている。空間率 ϵ の適用範囲は $0.4 \sim 3d_t/(2d_p + 3d_t)$ である。

式(9)の実験式を用いた計算値を Fig. 3 に実線として図示した。また、式(9)による予測値と実験値との比較を Fig. 5 に示す。実験値は直線上付近に分布しており、本実験範囲内において式(9)の実験的相関式は良好な予測を与えるものと思われる。

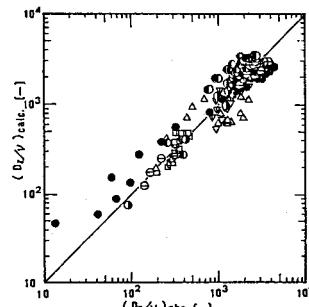


Fig. 5 Comparison between the predictive and the experimental dispersion coefficients. Symbols are indicated in Table 1.

(3) 既往の実験式との比較

充填層内の流体混合特性は、化学工学の分野で古くからよく研究されている。しかし、流動層に対しては、液系・気系の両流体の研究が行われているものの、いまだに信頼性のある D_z の計算式は提示されていない。

鞭ら⁵⁾は、粒子に砂を使用して D_z の概略的算定式を提示している。

$$D_z/v = 70|R_{ep}/(1-\epsilon)|^{0.5} \quad \dots \dots \dots \quad (10)$$

ここに、 $R_{ep} = u \cdot d_p / \nu$: 粒子レイノルズ数 (-), ν : 流体の動粘性係数 (cm²/s) である。しかし、式(10)は粒子密度の影響は含まれておらず適用範囲は限定される。

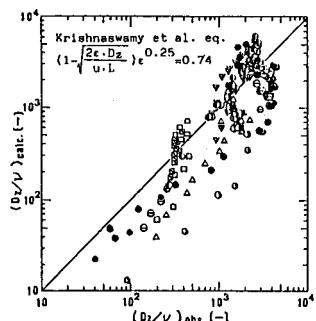


Fig. 6 Comparison between Krishnaswamy's equation and the experimental dispersion coefficients. Symbols are indicated in Table 1.

Krishnaswamy et al.⁶⁾は、分散数 ($D_z \cdot \epsilon / u \cdot L$) が空間率 ϵ だけの関数とした次式を提案している。

$$\left(1 - \sqrt{\frac{2\varepsilon \cdot D_z}{\mu \cdot L}}\right) \varepsilon^{0.25} = 0.74 \dots \dots \dots \quad (11)$$

式(11)を使用して計算した D_s/ν と本実験値との比較を Fig. 6 に示す。本実験値の大多数は直線上付近にあるものの、粒径の小さな粒子に対しては、実験値の方が高い値を示している。

Chung and Wen⁷⁾は、粒子レイノルズ数 R_{ep} の関数として次式を提示している。

$$\frac{\varepsilon \cdot P_e}{R_{emf}/R_{ep}} = 0.20 + 0.011 R_{ep}^{0.48} \dots \dots \dots \quad (12)$$

ここに, $P_e = (d_p \cdot u / \varepsilon \cdot D_z)$: ペクレ数 (-), R_{ems} : 最小流動化時の粒子レイノルズ数 (-) であり, R_{ems} として次式を用いている.

$$R_{ems} = \sqrt{33.7^2 + 0.0408G_a} - 33.7 \quad \dots \dots \dots \quad (13)$$

ここに、 $G_a = (\rho_p - \rho_F) d_p^3 \cdot g / \nu^2 \cdot \rho_F$ ：ガリレオ数（-）を示す。式(12), (13)を使用した計算値と本実験値との

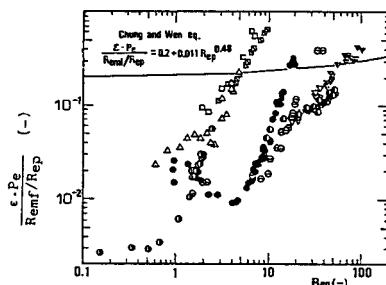


Fig. 7 Relationship between particle Reynolds number R_{ep} and $\varepsilon \cdot R_{ep} \cdot R_{em}/R_{ep}$. Symbols are indicated in Table 1.

比較を Fig. 7 に示す。Krishnaswamy の式 (11) との比較と同様に、式 (12), (13) による予測値よりもかなり小さく、粒径 $d_p=0.203 \text{ mm}$ のガラスビーズでは最大約 2 オーダーもの差がある。Krishnaswamy の式 (11) は粒径 $0.5 \sim 14.3 \text{ mm}$, Chung の式 (12) は $0.307 \sim 7.137 \text{ mm}$ の粒子を用いて求めた相関式であり、本実験で使用した粒子 ($d_p=0.203 \sim 1.911 \text{ mm}$) に比べ非常に大きな粒子に対する実験式である。この粒径の違いのために、本実験値 D_z が高めにでたものと思われる。このため、式 (11), (12) は、小粒子の流動層に対して D_z を過小に算出する可能性があり、廃水処理装置に一般的に用いられる粒径 $0.2 \sim 2 \text{ mm}$ 、粒子レイノルズ数 R_{ep} $0.1 \sim 100$ の粒子に対しては、本実験の相関式是有効だと思われる。

4. 結論

トレーサー実験から、流動層内の流体混合は分散モデルで記述できることが確認された。軸方向分散係数 D_z は粒径 d_p に依存して、ある空間率 ε で最大となる。そこで Taylor の解析と Kozeny の模型を導入することによって、粒子の挙動の影響を空間率 ε と粒径 d_p の関数として軸方向分散係数 D_z を算出する実験的相関式を得た。

使用記号は、頁数の制限から本文中に単位とともに表示し、一覧表としての整理はしなかった。

参 考 文 献

- 桃井清至ほか：土木学会論文報告集，第339号，pp.99～108，1983年11月。
 - 土木学会編：衛生工学実験指導書（プロセス編）
 - 白井 隆：流動層，科学技術社，1973。
 - 玉井信行：土木学会編新体系土木工学22 密度流の水理，技報堂出版，1980。
 - 鞭 巍ほか：流動層における流体混合の研究，化学工学，第25卷，第10号，pp.757～764，1961。
 - Krishnaswamy, P. K. et al. : Correlating Parameters for Axial Dispersion in Liquid Fluidized System, The Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 56, pp. 550～553, 1978.
 - Chung, S. F. et al. : Longitudinal Dispersion of Liquid Flowing Through Fixed and Fluidized Beds, AIChE Journal, Vol. 14, No. 6, pp. 857～866, 1968.

(1984.5.31・受付)