

VII-6 クロスフロー型膜ろ過における剥離・堆積現象に関する実験的考察

東北大学 学生員 ○小粥 愛子
東北大学 正会員 後藤 光亀
東北大学 正会員 大村 達夫

1. はじめに

近年、中小規模水道を中心に膜ろ過処理技術が急速に普及してきている。しかし膜ろ過は膜面上の被除去物質の堆積による抵抗の増大が生じ、物理洗浄の回数増加の原因になり膜ろ過継続時間の減少につながる。

そこで、本研究では膜表面に堆積した粒子に働く種々の力の釣り合いを考慮し、透水係数や粒子体積率（ケーキ層中に占める粒子の体積割合）の関係からケーキ層の堆積現象を計算により求め、人工濁質（カオリン）を用いたクロスフロー型膜ろ過における剥離・堆積に関する基礎実験の結果と比較検討した。

2. 実験方法

11.5 μm 以下のカオリン粒子（平均粒径 0.6 μm ）を 100mg/l に調整し、人工原水とした。実験に用いた膜は分画分子量 50000 のラポ用モジュールである。中空糸の内径は 0.8mm、本数は 400 本で有効膜面積は 0.2 m^2 であり、ろ過方式は内圧式である。デッドエンド方式（全量ろ過方式）で人工原水を透過流速 3m/d による定量ろ過をし、カオリンを膜面上に堆積させた。清水に切り替えた後、透過流速を 1 または 3m/d に維持した後、クロスフロー流速を 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.4, 0.7m/s に順次増加させ、各条件での剥離量を測定した。

3. 解析方法

図1のように膜面上の粒径 d_p の球状粒子に作用する膜接線方向の力を F_p 、法線方向の力を F_q と定義する。 F_p はクロスフロー流速 v_c によって力じる抗力(F_{p1})と浮力・重力(F_{p2})の合力であり、 F_q は透過流速 v_f によって生じる抗力(F_{q1})と、せん断力によって生じる揚力(F_{q2})の合力である¹⁾。

$$F_{p1} = 1.276\pi\rho_p d_p^2 v_c^2 f \quad (1) \quad f: \text{摩擦損失係数}$$

$$F_{p2} = \frac{\pi}{6}(\rho_s - \rho_l)gd_p^3 \quad (2) \quad \mu: \text{粘性係数}$$

$$F_{q1} = 3\pi\mu d_p v_f \quad (3) \quad \nu: \text{動粘性係数}$$

$$F_{q2} = 0.01\pi\mu \frac{f^2 v_c^4 d_p^4}{v^3} \quad (4) \quad \rho_s: \text{粒子密度}$$

$$\rho_l: \text{水の密度}$$

$$g: \text{重力加速度}$$

また、モデルの簡素化のため、着目した粒子の直前に高さ h の障害物があると仮定する。図より、A点でのモーメントの釣り合いから堆積するための条件は次式となる。

$$F_q \sqrt{\left(\frac{d_p}{2}\right)^2 - \left(\frac{d_p}{2} - h\right)^2} \geq F_p \left(\frac{d_p}{2} - h\right) \quad (5)$$

この式から堆積する最小の障害物高さ $h_{\min}$ は次式で表される。

$$h_{\min} = \left(1 - \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{F_p}{F_q}\right)^2 + 1}}\right) \frac{d_p}{2} \quad (6)$$

最大の障害物高さが $h_{\max}$ であり、障害物高さの分布が一樣であると仮定すると、粒子径 d_p に対するケーキ層への堆積確率 γ は以下になる。

$$\gamma = 1 - \frac{h_{\min}}{h_{\max}} = 1 - \left(1 - \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{F_p}{F_q}\right)^2 + 1}}\right) \frac{d_p}{2h_{\max}} \quad (7)$$

また、粒子体積率 $\varepsilon_s (=1 - \varepsilon, \varepsilon: \text{空隙率})$ と透過率 k は粒子有効圧力 P_s を用いて、次式のように算出される²⁾。

$$\varepsilon_s = 0.122P_s^{0.0659} \quad (8), \quad k = 9.60 \frac{(1 - \varepsilon_s)^3}{\varepsilon_s^2} \cdot \frac{\mu}{\rho g} \quad (9)$$

厚さ L のケーキ層の平均粒子体積率 $\varepsilon_{s,av}$ と平均透過率 k_{av} は以下のように表される。

$$\varepsilon_{s,av} = \frac{\int_0^{P_m} \varepsilon_s k dp_s}{\int_0^{P_m} k dp_s} \quad (10), \quad k_{av} = \frac{\int_0^{P_m} k dp_s}{\int_0^{P_m} dp_s} \quad (11)$$

膜間差圧 ΔP と膜面上の有効粒子圧力 P_{sm} により、ろ過抵抗式は次式で表される。

$$v_f = \frac{k_{av} P_{sm}}{\mu L} = \frac{k_m \Delta P - P_{sm}}{\mu \Delta x_m} \quad (12) \quad \Delta x_m: \text{膜厚さ}$$

k_m : 膜透過率

また、粒子の物質収支より次式が成り立つ。

$$\frac{dL}{dt} = \frac{\varepsilon_{s0} v_f}{\varepsilon_{s,av} - \varepsilon_{s0}} \gamma \quad (13)$$

式(9)～(12)を用いて繰り返し計算をすることにより粒子有効圧力 P_{sm} をもとめ、式(13)により単位時間当たりの堆積するケーキ層厚さ（ケーキ層増加率）を知ることができる。

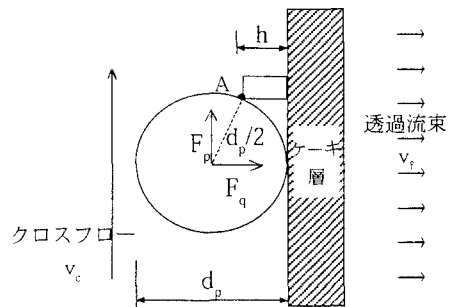


図1 ケーキ層表面に接触する球状粒子に作用する力

4. 結果と考察

・実験

各 v_c での剥離量を剥離寄与率により評価する.

$$\text{剥離寄与率(\%)} = \frac{\text{各クロスフローにおける剥離量}}{0.7\text{m/s までの累積剥離量}} \times 100$$

図3に, v_f が1m/dと3m/dの場合の剥離寄与率を示す. デッドエンド状態より v_f 固定で v_c を上昇させた場合, 0.01m/sという小さい v_c でもケーキ層上部の堆積層は一度剥離を生じるが, 次に大きな剥離が生じるのは0.4m/sに上昇した時となり, 必ずしも連続的に剥離が生じていない. このことは剥離が不連続に, ある値で生じることを示している. したがって, フラッシングの様な膜面上の堆積物の除去には被除去物質の形状や付着性などの特性値が大きく影響するものと推察される. 通常の膜ろ過では操作条件として v_c , v_f を初期より固定して行う場合が多いので, 次に膜ろ過面上への堆積過程を式(1)から式(13)の関係を用いて考察する.

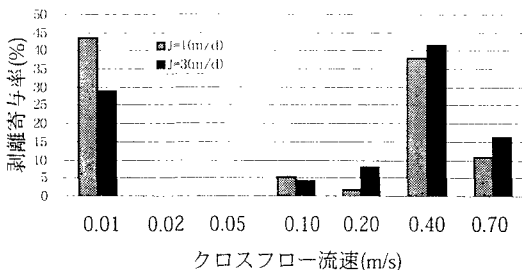


図2 クロスフロー速度と剥離寄与率

・解析

透過流速3m/dの場合の F_{p1} , F_{p2} , F_{q1} , F_{q2} と v_c および粒径との関係をそれぞれ図3-1, 3-2に示す. 図3-1より被除去物質の粒径が $0.6 \mu\text{m}$ の場合, v_c が大きくなるに従い F_{q2} が大きく増加するが, F_{q1} は v_f の抗力であり一定値を示す. その結果, v_c が1.7m/s付近で, $F_{q2} > F_{q1}$ となり粒子は膜面上に堆積することができなくなる. すなわち, 粒径が変化しない場合, v_c をある一定の値より大きくすることによって剥離を促すことができると推察される. 図3-2より, v_c を1m/sで一定にした場合, 粒径が $2 \mu\text{m}$ 以上で $F_{q2} > F_{q1}$ となり同様に膜面上に堆積することができなくなる.

懸濁物質の粒径が $0.6 \mu\text{m}$ の場合における各 v_f 下での v_c と γ の関係を図4に示す. v_c が0.3m/sより小さくなると γ の増加は大きくなるが, v_c が大きい場合は γ の変化は小さくなり, v_c を上昇させてもその効果がそれほど期待できないことを示している.

次に $0.6 \mu\text{m}$ のカオリン懸濁液100mg/lを1時間クロスフローろ過をした場合のケーキ層の $\varepsilon_{s,av}$ と v_c の関係を図5に示す. 同一の v_f の場合, v_c が0.5m/sまでは v_c を増加することにより $\varepsilon_{s,av}$ が大きく減少し, ケーキ層内の空

隙率が増加していることが分かる. しかし, その v_c を0.5 m/sより上昇させても $\varepsilon_{s,av}$ に変化は少なく, ケーキ層中の粒子の堆積状態に大きな変化はないと推察される. モデルによる計算結果はクロスフロー膜ろ過時の粒子の堆積状態を表現できるが, 本報告の実験結果のように v_c を増加させた場合の剥離速度をどのように定量的に評価するかは今後の課題である.

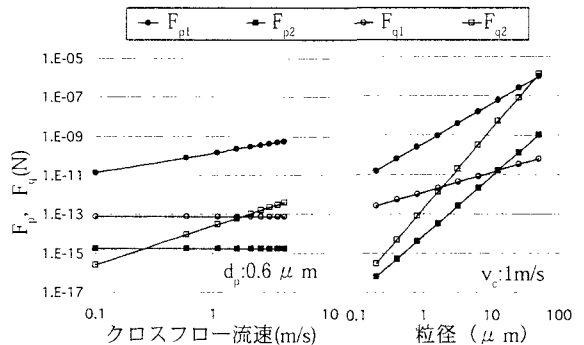


図3-1 クロスフロー流速と F_p, F_q (N) 図3-2 粒径 d_p と F_p, F_q (N)

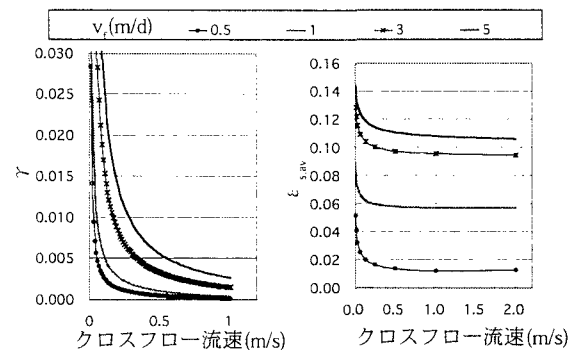


図4 クロスフロー流速と堆積確率 γ 図5 クロスフロー流速と粒子体積率 $\varepsilon_{s,av}$

5. 終わりに

粒子に働く4つの力の釣り合いについて考慮するモデルにより, クロスフロー型膜ろ過の剥離, 堆積現象の v_c , v_f , d_p の影響について基礎的考察を加えた. 今後, 粒子間に働く力についても考慮し, 更にモデルを発展させていきたいと考えている.

(参考文献)

- 1) K. Stamatakis and Chin Tien: A Simple Model of Cross-Flow Filtration Based on Particle Adhesion. *AIChE Journal*, Vol. 39, No.39, pp.1292-1302, 1993.
- 2) 西村修: 上水汚泥の性状と固液分離特性に関する研究. 東北大学博士論文, 1990.3