

VII-37

クロスフロー型膜ろ過における堆積・剥離現象のモデル化

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

水道水に対する膜ろ過技術が普及してきており、より安全な浄水システムとして膜ろ過が重要な位置を占めてきている。クロスフロー型膜ろ過では操作因子であるクロスフロー流速および透過流束と、被除去物質（懸濁物質）の粒径や形状の関係は充分解析が行われていない。またファウリングと物理洗浄の関係は不明な点が多い。

そこで本研究では膜表面上に堆積した粒子に働く力のつりあいを考え、粒子形状を考慮したモデルを構築した。このモデルと人工濁質（カオリン）を用いたクロスフロー型膜ろ過における剥離に関する基礎実験の結果と比較検討を行った。

2. 実験方法

粒径 $11.5 \mu\text{m}$ 以下のカオリン粒子（平均粒径 $0.6 \mu\text{m}$ ）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 $50,000\text{Da}$ のラボ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 0.2m^2 であり、ろ過方式は内圧式である。人工原水を透過流束 3m/d で全量ろ過し、カオリンを膜面上に堆積させた。清水に切り替えたあと透過流束を 1 または 3m/d に維持しクロスフロー流速を $0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.4, 0.7\text{m/s}$ 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

3.1. 球状粒子の場合

膜面上の粒径 d_p の球状粒子に働く膜接線方向の力を F_p 、膜法線方向の力を F_q と定義する。 F_p はクロスフロー流速 v_c の抗力 (F_{p1}) と重力・浮力 (F_{p2}) との合力 ($F_p = F_{p1} - F_{p2}$) であり、 F_{q1} は透過流束 v_f による抗力 (F_{q1}) と v_c による揚力 (F_{q2}) の合力 ($F_q = F_{q1} - F_{q2}$) であり、それぞれ次式で与えられる¹⁾（ただし膜面近傍のクロスフロー流速分布は直線的に変化すると仮定）。

$$F_{p1} = 1.7007 \times \frac{1}{2} \rho_l C_D A_p v_{cm}^2 = 1.7007 \times 3\pi \mu d_p v_{cm} \quad \dots (1)$$

$$F_{p2} = (\rho_s - \rho_l) g V = \frac{\pi}{6} (\rho_s - \rho_l) g d_p^3 \quad \dots (2)$$

$$F_{q1} = \frac{1}{2} \rho_l C_D A_q v_f^2 = 3\pi \mu d_p v_f \quad \dots (3)$$

$$F_{q2} = \frac{1}{2} \rho_l C_D A_q u_c^2 = 4267 \pi \rho_l v_c^2 d_p^4 d_m^{-2} \quad \dots (4)$$

C_D : 抵抗係数[-], g : 重力加速度 [m/s^2], ρ_l : 水の密度 [kg/m^3], ρ_s : カオリンの密度 [kg/m^3], A_p : クロスフロー方向の投影面積 [m^2], A_q : 透過流束方向の投影面積 [m^2], V : 粒子の体積 [m^3], v_{cm} : 粒子中央部でのクロスフローによる速度 [m/s], u_c : 粒子中央部での揚速度 [m/s], d_m : 中空糸内径 [m]

着目した粒子直前に高さ h の障害物があると仮定する。A 点回りのモーメントのつりあい式から堆積するための条件式は

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

となるので、この式を満たす最小の h を

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

と定義すると、障害物の高さが $h_{\min}$ よりも大きい場

合、粒子は堆積する。そこで h の最大値が $h_{\max} (= d_p/2)$ であり、障害物の高さが一様に分布していると仮定すると、粒径 d_p の球状粒子の堆積確率 γ は次式で表される。

$$\gamma = 1 - \frac{h_{\min}}{h_{\max}} \quad \dots (7)$$

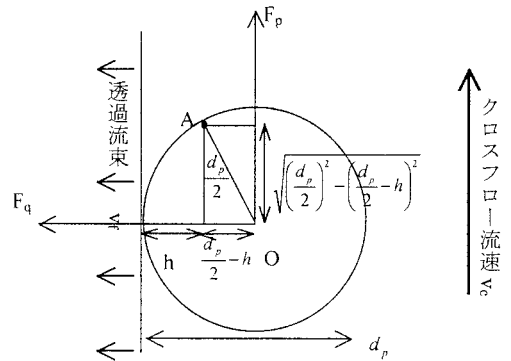


図1 膜またはケーキ層表面上の粒子（球状粒子）

3.2. 回転楕円体状粒子の場合

実験で用いたカオリン粒子は長辺 $1 \mu\text{m}$ 、厚さ $0.02 \sim 0.1 \mu\text{m}$ 程度の六角板状の粒子である。この粒子をモデル化し、回転楕円体（長軸: d_p 、短軸: d_p/n ）とする。回転楕円体の短軸が膜と垂直に堆積すると仮定すると、 A_p は粒径 d_p の球の $1/n$ 倍、 A_q は等倍、 V は $1/n$ 倍になるので

$$F_{p1} = 1.7007 \times \frac{1}{2} \rho_l C_D A_p v_{cm}^2 = 1.7007 \times 3\pi \mu d_p v_{cm} \times \frac{1}{n} \quad \dots (8)$$

$$F_{p2} = (\rho_s - \rho_l) g V = \frac{\pi}{6} (\rho_s - \rho_l) g d_p^3 \times \frac{1}{n} \quad \dots (9)$$

$$F_{q1} = \frac{1}{2} \rho_l C_D A_q v_f^2 = 3\pi \mu d_p v_f \quad \dots (10)$$

$$F_{q2} = \frac{1}{2} \rho_l C_D A_q u_c^2 = 3\pi \mu d_p u_c \times 1 = 4267 \pi \rho_l v_c^2 d_p^4 d_m^{-2} n \quad \dots (11)$$

となり、球状粒子と同様にして堆積確率 γ を求める。

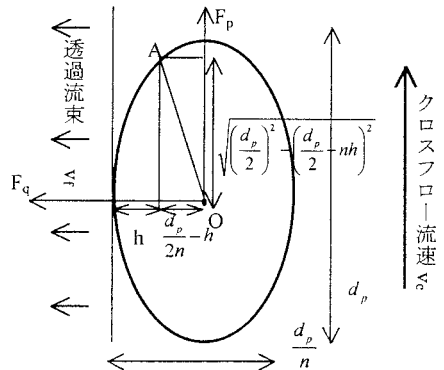


図2 膜またはケーキ層表面上の粒子（回転楕円体状粒子）

4. 結果と考察

4.1. 流体力学的な力

透過流速 1m/d で、懸濁物質が球状で粒径 $1\mu\text{m}$ の場合と、回転楕円体で長軸 $1\mu\text{m}$ 、短軸 $0.1\mu\text{m}$ の場合の F_{p1} 、 F_{p2} 、 F_{q1} 、 F_{q2} と v_c との関係をそれぞれ図 3、図 4 に示す。3.1、3.2 から判るように球状粒子の粒径と回転楕円体状粒子の長軸が同じ場合、 F_{p1} と F_{p2} は A_p 、 V がそれぞれ $1/n$ 倍になることから、 F_p は $1/n$ になる。一方、 F_{q1} は A_q に変化がないため両粒子で同一の値をとるが、球状粒子に比較し回転楕円体状粒子の方が揚速度が $1/n^3$ 小さいため F_{q2} が小さくなる。

粒子が堆積しないための条件として、(5)式を満足しない場合とともに、 $F_q < 0$ の場合もあげられる。 v_c が 0.72m/s よりも大きいと球状粒子は堆積しない(図 3)が、回転楕円体状粒子は 10m/s の v_c でも堆積する可能性がある(図 4)。以上より懸濁物質の形状によりその粒子が受ける影響が大きいことが示唆された。

4.2. 堆積確率

透過流速が 1m/d で懸濁物質粒径が $0.01\sim 1\mu\text{m}$ の球状粒子の γ と v_c との関係を図 5 に示す。 F_{p1} は粒径の 1 乗、 F_{p2} で 3 乗、 F_{q1} で 1 乗、 F_{q2} で揚速度も考慮すると 4 乗で効く。そのため、膜面に大きい粒子は堆積しにくく、小さいものが選択的に堆積する。

透過流速が 1m/d で懸濁物質を回転楕円体状粒子とし、長軸が $1\mu\text{m}$ 、短軸が 0.06 、 0.1 または 1 (球状粒子) μm の場合の γ と v_c との関係を図 6 に示す。同一の長軸に対し、短軸が小さいものほどよく堆積する。短軸の長さを短くすると特に F_{p1} 、 F_{q2} を弱めるため(図 3、図 4)、堆積が促される結果となった。

4.3. 剥離寄与率

剥離寄与率を次式により定義する。

$$\text{剥離寄与率(\%)} = \frac{\text{各 } v_c \text{ における剥離量}}{0.7\text{m/s までの累積剥離量}} \times 100$$

図 7 に透過流速 1m/d の場合の実験結果(黒棒)および、解析結果(回転楕円体状粒子)を示す。解析結果は長軸が $1\mu\text{m}$ 、短軸が 0.06 、 0.1 または 1 (球状粒子) μm である。

実験の結果、デットエンド状態より v_{rf} が固定で v_c を上昇させた場合、 0.01m/s という小さい v_c でも剥離が生じた。しかしその後 v_c を $0.02\sim 0.1\text{m/s}$ に上昇させても剥離が生じず、 0.4m/s にした場合に剥離が生じたが、 0.7m/s に上昇させても大きな剥離は生じなかった。

解析の結果、球状粒子(短軸 $1\mu\text{m}$ の場合)は v_c が 0.01m/s でほとんどの粒子が剥離してしまう。しかし形状を考慮し、懸濁物質の粒子形状を回転楕円体と仮定すると、 v_c が十分に大きくなると F_{p1} と F_{q2} が大きくなるため(図 3、図 4)、小さい v_c では剥離が起きない。そのため、剥離はあるピークを生じるという結果が示された。

5. おわりに

形状を考慮した力のつりあい式のモデルを構築することにより、クロスフロー型膜ろ過の剥離現象の粒子特性と v_c の影響について考察を加えた。懸濁物質の粒径とともに形状もファウリングに大きな影響を与えることが示唆された。

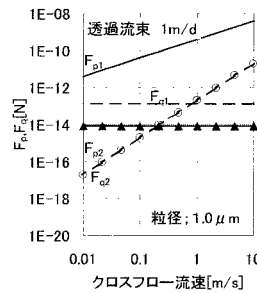


図 3 クロスフロー流速と F_p 、 F_q (球状粒子の場合)

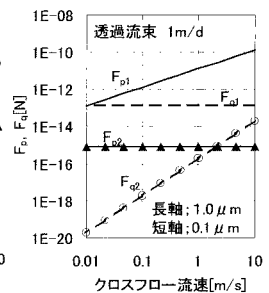


図 4 クロスフロー流速と F_p 、 F_q (回転楕円体状粒子の場合)

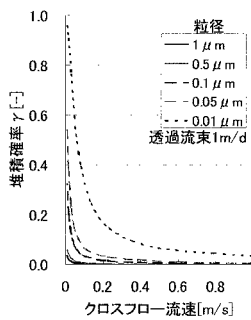


図 5 クロスフロー流速と堆積確率 (球状粒子の場合)

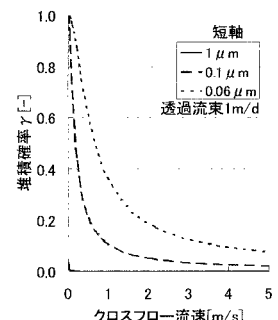


図 6 クロスフロー流速と堆積確率 (回転楕円体状粒子の場合)

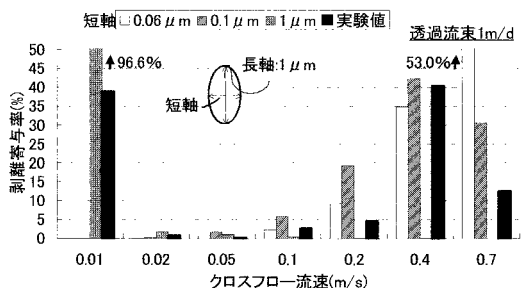


図 7 クロスフロー流速と剥離寄与率 (実験と解析)

(参考文献)

1) K.Stamatikakis and Chin Tien: a Simple Model of Cross-Flow Filtration Based on Particle Adhesion, AIChE Journal, Vol.39, No.39, pp.1292-1302, 1993