

連続流フロッキュレーターでのフロック形成に関する研究

北海道大学工学部 正会員 工博 丹保 憲仁 ○学生員 渡辺 義公
研究生 広田 栄三 同 庄司 正志

1. はじめに

流水が押し出し形である様な理想的なフロッキュレーターに代りて筆者等のフロック形成に関する基礎理論を直ちに適用して設計を行なうことが出来る⁽¹⁾。しかしながら、実際のフロッキュレーターは一般に3~4段程度の直列攪拌槽から成り立っており、逆混合 (Back mixing) の影響を無視することが出来ない。そこで本報ではある滞留時間分布を持つ突フロッキュレーターに対しての筆者等のフロック形成理論の応用に代りて論じ、突設計への指針を得ることを試みた。

2. 連続流フロッキュレーター内の滞留時間分布と混合特性

2-1 実験用連続流フロッキュレーター

実験用パイロットプラントは前報⁽²⁾で用いたバッチ式フロッキュレーターと同一の攪拌特性のものを4段に直列に用いた。したがって、フロッキュレーターの攪拌特性を一括表示するのに用いられる単位体積中のエネルギー消費率 (ϵ_0) と攪拌翼回転数の関係等は前報のバッチ式フロッキュレーターと同様である。装置は縦240 cm, 横120 cm, 深さ75 cmの角型水槽で開孔比が6%の隔壁で4つに仕切られ、水平パドル型攪拌機を備えている。フロッキュレーターの後には横流式沈み池を付した。装置の概要は図-1に示す通りである。攪拌翼は無段変速モーターによって5~20 r.p.m.の間で自由に回転数を設定出来る。

2-2 実験方法と混合特性の表示法

連続流フロッキュレーター内の混合特性を求めめるためにNaClをトレーサーとして300~400 ppm注入し、各段のフロッキュレーター整流壁の孔に白金電極を付けてトレーサー濃度の変化を電極間の抵抗の変化として計測し、交流電流電圧測定用バリボックスと高感度記録計によって自動記録した。

混合特性を表示するには幾つかの方法があるが⁽³⁾本報においては残余

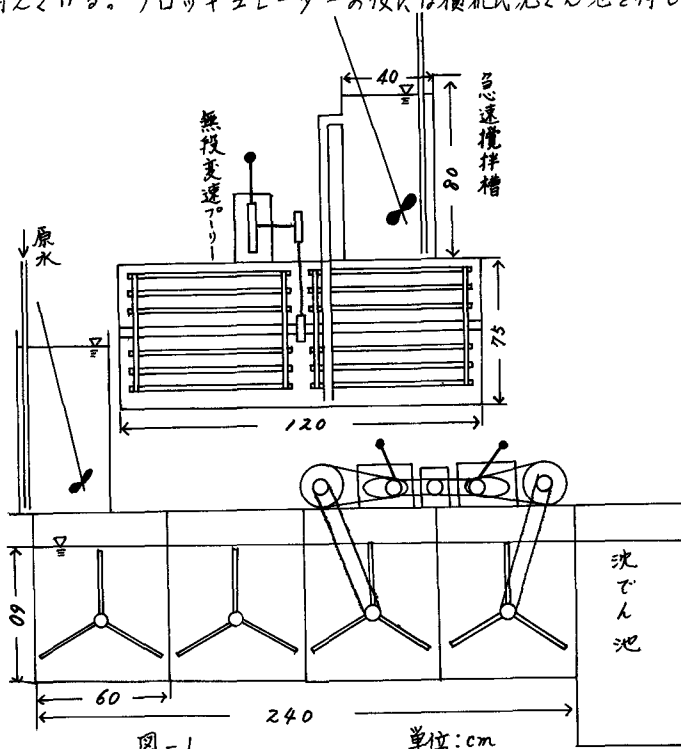
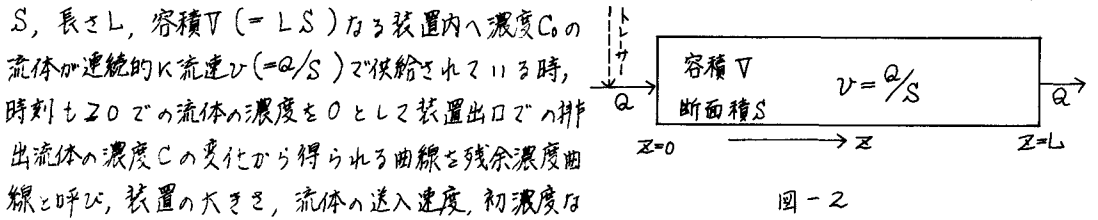


図-1

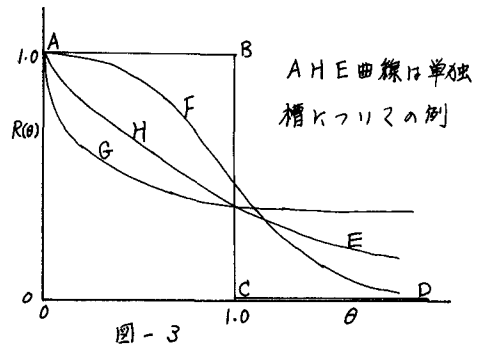
濃度曲線 (Residence time curve) と過渡応答の2つの方法を採った。図-2のような断面積



とか実験条件で異なることによる影響を除くため、通常、濃度はその時の濃度を初濃度で除した値 C/C_0 を、時間は無次元の時間 $\theta = t/T$ で表わして正規化しておく。ここで、 $T = L/v = V/Q$ であり装置内での平均滞留時間と呼ばれる。また C/C_0 は θ と共に変化する式-1で定義した関数 $R(\theta)$ が残余濃度曲線を表わすことになる。

$$R(\theta) = C/C_0 \quad \text{----- (1)}$$

図-3は $R(\theta)$ の例を模式的に示したものであるが、流れがピストン流であれば $ABCD$ 、完全混合であれば $AH E$ の形を示すが、一般にはこれらの中間に来るものが多い AF のような傾向を示したり、死空間 (Dead space) があつたり流体の一部が短絡したりしている場合には AG のような形になる。残余濃度曲線と全く逆の方法で求められたものが過渡応答 (Indicical response) である。したがって、時間 θ に対する出口濃度を無次元濃度 C/C_0 とし関数 $f(\theta)$ と定義すれば $R(\theta)$ の定義からも明らかなように式-2にまつ $R(\theta)$ と $f(\theta)$ は交互に変換しうる。



$$f(\theta) = 1 - R(\theta) \quad \text{----- (2)}$$

Dirac の δ -関数に近似しうる形で送入されたトレーサに対する応答を $E(\theta)$ とすると $E(\theta) d\theta$ は $\theta = 0$ の時送入された全溶質量 (これを1とする) に対してその後の $\theta \sim \theta + d\theta$ の間に排出された溶質の分率を表わしている。この意味で $E(\theta)$ のことを滞留時間分布関数 (Residence time distribution function) と呼ぶ。 $E(\theta)$ は $R(\theta)$ や $f(\theta)$ に対して次のような簡単な関係がある。

$$E(\theta) = df(\theta)/d\theta = -dR(\theta)/d\theta \quad \text{----- (3)}$$

$$f(\theta) = 1 - R(\theta) = \int_0^\theta E(\theta) d\theta \quad \text{----- (4)}$$

2-3 実験結果の解析

トレーサによる応答の例を第3槽での残余濃度曲線に示したのが図-4である。同等の完全混合槽を9個直列させた時の $R(\theta)$ は各槽毎の物質収支をとることにより次式となる。

$$R(\theta) = e^{-\theta} \left\{ 1 + \theta + \theta^2/2! + \theta^3/3! + \dots \dots \dots \theta^{n-1}/(n-1)! \right\} \quad \text{----- (5)}$$

したがって、この場合の $E(\theta)$ は

$$E(\theta) = df(\theta)/d\theta = \theta^{n-1} e^{-\theta} / (n-1)! \quad \text{----- (6)}$$

式-5を横軸を槽列全体での滞留時間中 (t/nT) を基準として図示すると図-5となる。図から槽数を増すと滞留時間分布の幅が狭くなり押し出し流れに近くなることか分かる。式-6を θ を基準にして書き換えると式-7となる。

$$E(\phi) = n^n \phi^{n-1} \exp(-n\phi) / (n-1)! \dots\dots\dots (7)$$

もし本実験で用いた個々のフロック形成槽が完全混合槽として近似的に取扱うことが出来るとする、図-4を横軸を中にとり標準化すれば図-5と一致するはずである。実験値を第1段と3段について標準化すると図-6が得られる。図から知られるように実験値は完全混合よりも僅かな遅れを伴った混合特性を示している。遅れの原因としては槽固有のものよりもむしろ今回の実験ではトレーサー感知電極を各槽間の隔壁に取付けたので、測定されたトレーサー濃度は隣り合う2槽の濃度が混じり合ったものとなっているためと考えられる。この点を確かめるために、使用したフロック形成槽を単独槽として用いた槽排出濃度を測定すれば良い。これと同様の実験は Argaman が筆者等と同型のバドル式フロッギエーターを用いて行っており⁽⁴⁾、その結果 $G = 30 \sim 200 \text{ sec}$ の範囲では攪拌強度は滞留時間分布に影響せず、その混合特性も完全混合と見なしても良いことを明らかにしている。

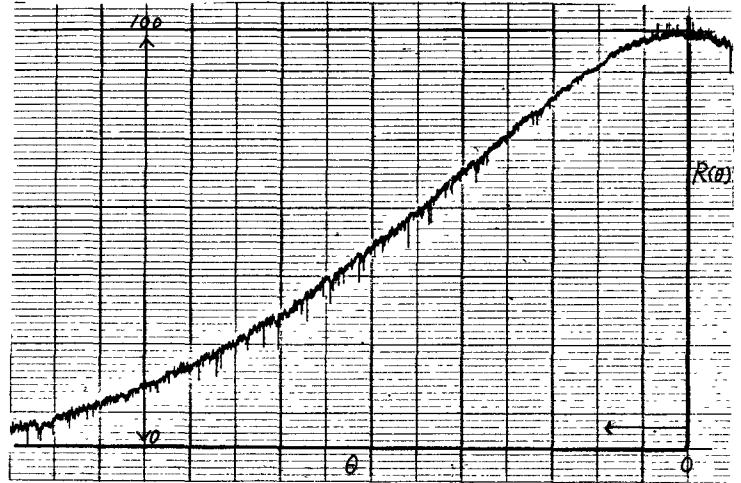


図-4

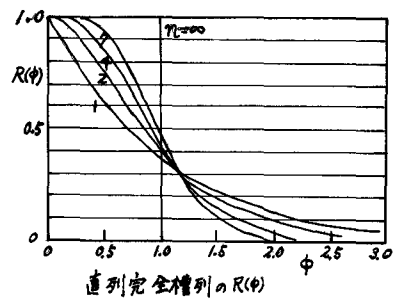


図-5

したがって、本報ではこの遅れも無視し近似的に完全混合として取扱うことにした。なお、図-6は 13 r.p.m. のデータについて示したものであるが 6~13 r.p.m. の範囲では攪拌強度による混合特性の差は見られず、この点についても Argaman の結果と一致した。

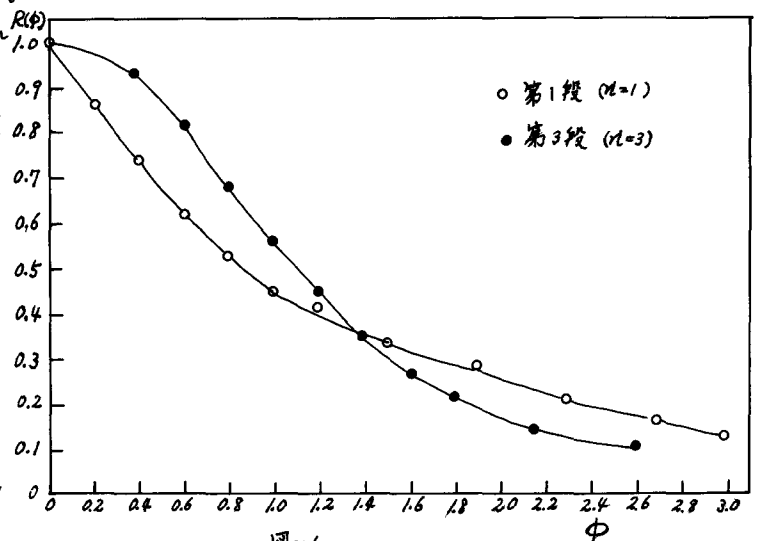


図-6

3 連続流フロッギエーター での微小粒子群の除去速度 3-1 除去速度の一般式

今、連続流フロッキュレーターが縦方向混合を伴う定常状態で操作されている場合を考える。この場合には微小粒子群の除去のパターンはバッチもしくは押し出し流水のフロッキュレーターでのそれとは異なっている。すなわち、バッチではすべてが初期粒子と見なされる微小フロックが互いに衝突合—し合い大形フロックへと成長しながら微小粒子群は消滅して行くが、混合を伴う連続流定常状態においてはある粒度組成を持ったフロック群の存在するフロック形成槽内に急速攪拌を終了した微小フロック群が連続的に流入し、接触フロック形成のよう形で微小フロックが既成の微小フロック群（フロッキュレーター内で流下するにつれてフロック群は大形となる）に吸合される過程が存在する。したがって逆混合を伴う連続流フロッキュレーター内での定常状態における微小フロック群の除去は単一組成粒子の成長して行く形のフロック形成式のみによる論ずることが出来ず、既存のフロックとの相互作用を持った接触フロック形成として各々の槽毎に考える必要がある。前報で明らかにしたように接触フロック形成は均—次反応であるから、流れモデルを考慮しても次のように簡単に理論化することが出来る。

フロック形成槽内へ初期濃度 C_0 の微小粒子群が連続的に供給され、槽内で吸合反応が進み遂に平均濃度 C となって槽から流出して行く場合を考える。この時のフロック化される初期粒子群濃度 C はそのフロック形成槽の δ -応答を $E(\phi)$ とすれば均—次反応である場合に限り、槽内での流体の混合機構のいかんにかかわらず式-8で示すことが出来る。⁽⁹⁾

$$\frac{C}{C_0} = \int_0^{\infty} e^{-K_c \phi} \cdot E(\phi) d\phi \quad \text{----- (8)}$$

ここで、 C_0 : 初期粒子の初濃度、 K_c : 反応速度係数（無次元）、接触フロック形成の場合には

$$K_c = \frac{9}{\sqrt{15}} \bar{P} \sqrt{\frac{E_0}{\mu}} V_f t \quad \text{----- (9)}$$

ここで、 E_0 : 有初エネルギー消費率 ($\text{erg/cm}^2 \cdot \text{sec}$)、 V_f : フロック体積（無次元）、 t : 反応時間
理論滞留時間 V/Q を用いる (sec)

$E(\phi)$ として式-7を用いると式-8は次式のよう形に積分され、第 n 段からの流出濃度 C_n は、

$$\frac{C_n}{C_0} = \frac{1}{(1 + K_{c1})(1 + K_{c2})(1 + K_{c3}) \cdots (1 + K_{cn})} \quad \text{----- (10)}$$

ここで、 $K_{c1} \cdots K_{cn}$ はそれぞれ第1段……第 n 段での反応速度係数である。したがって、既知の攪拌強度と滞留時間 t のフロッキュレーターでは、 $\bar{P}$ と V_f を求めれば式-9、10より流出水中の微小フロック群の濃度を知ることが出来る。

3-2 二成分系フロック形成反応における $\bar{P}$ と V_f の関係

着しく粒径を異にする二成分系のフロック形成反応における微小粒子群の消滅速度は式-11で示される。⁽⁵⁾

$$\frac{dn}{dt} = - \frac{9}{\sqrt{15}} \bar{P} \sqrt{\frac{E_0}{\mu}} V_f n \quad \text{----- (11)}$$

式中の n , V_f , $\bar{P}$ は各々任意時間における着目している微小粒子数、フロック体積、衝突合—確率であるから、任意の瞬間における微小粒子群の消滅速度は式-11によって求められる。通常の高速接触流せん池などを用いられている接触フロック形成は、与条件下における最大成長平衡分布に達した母

フロック群に対する微フロックの吸合反応であり，この場合 $K_1 \bar{P} V_f = \text{一定}$ と見なすことが出来る。そこで，式-11は積分で $\bar{P}$ 個数比を濃度比と等しくおくと未反応率 C/C_0 。式-12のように解析的に求めることが出来る。

$$\frac{n}{n_0} = \frac{C}{C_0} = \exp \left(- \frac{9}{\sqrt{15}} \bar{P} \sqrt{\frac{E}{u}} V_f t \right) \text{-----}(12)$$

しかしながら， $\bar{P}$ と V_f （具体的にフロックの粒度組成）が刻々変化する通常のフロック形成池の過渡状態においては，式-12のような形で未反応率を得ることはできない。着目している時間でのフロックの粒度分布が分かれば $\bar{P}$ ， V_f は定まり，式-9，10によってフロッキュレーターからの流出水中に含まれる残存微小粒子群の濃度を算定することも出来るが，逆混合を伴う連続流フロッキュレーター内でのフロック群の粒度分布をバッチで行なうようなフロック形成基本式の数値解から求めると云った方法は現象の複雑さの故に採り得ない。そこで以下に示すようなモデルを設定して未反応率を求めることとした。過渡状態においては他の条件が固定されていれば， $\bar{P} = \bar{P}(t)$ ， $V_f = V_f(t)$ であり共に時間の関数であるから，便宜的に式-13のように両者の積が指数関数的に時間と共に変化するものと仮定する。

$$\bar{P} V_f = F(t) = K_1 \left(\frac{t}{T^*} \right)^\alpha \text{-----}(13)$$

ここで， t : フロック形成時間， T^* : フロック群が最大成長平衡に到るに要する時間， K_1 : 定数， $t = T^*$ では前報で示したように $\bar{P} = 1/45$ 程度であるから， $K_1 = 1/45 V_f^*$ ， V_f^* は成長平衡時のフロック体積式-13を式-11に代入して積分すると

$$\log \frac{n}{n_0} = \log \frac{C}{C_0} = - \frac{K_2}{\alpha+1} \left(\frac{t}{T^*} \right)^{\alpha+1} + K_3 \text{-----}(14)$$

$$K_2 = \frac{9}{\sqrt{15}} \sqrt{\frac{E}{u}} \frac{1}{45} V_f^* T^*, K_3 = \text{const} \text{-----}(15)$$

もし式-13，14から式-14の関係が成立するならば回分式フロック形成を行ない，フロック形成時間の経過に伴う微小フロックの減少を追随しその結果を横軸に $(t/T^*)^{\alpha+1}$ ，縦軸に $\log C/C_0$ をヒロプロットすると勾配が $-K_2/(\alpha+1)$ の直線関係が得られるはずである。ただし， $\alpha+1 > 0$ 。

実験は前報で示した回分式フロッキュレーターを用い，一定時間間隔でフロック形成槽より不攪乱採水し恒温水槽中にサンプリング管を浸しフロック群を30分間沈降させ，上澄の50ccをボウルビペットで抜き取りその中に含まれる微小粒子群の濃度を濁度として求めた。その結果を $\alpha = -0.5 \sim -0.6$ としてプロットしたのが図-7である。これから $\alpha = -0.6$ のプロットによってかなり良好な直線関係が得られたので， $\alpha = -0.6$ として式-13の形で $\bar{P} V_f$ を一括表示することが可能と考えた。直線の勾配を求めるために8r.p.m.以下の諸数値を式-15に代入して K_2 を求め $\alpha = -0.6$ とすると，直線の勾配は約3となり図の直線の勾配と大略一致する。

3-3 接触フロック形成反応における $\bar{P}$ と V_f の関係

十分に成長平衡に達している母フロック群に対して $\bar{P}$ は実験によって $\bar{P} \div 1/40 \sim 1/45$ と求められた。また，逆混合を持たないフロック形成における一般の衝突合-確率関数は式-16の形で示される⁽⁴⁾。

$$\alpha_f = \alpha_0 \left(1 - \frac{R}{S+1} \right)^2 \text{-----}(16)$$

ここで、 α_0 :初期衝突確率($\div 1/3$), R :着目している衝突合-
一によって形成される
フロックへの初期
粒子集合数, S :与
条件下で形成する
最大フロックへの初
期粒子集合数。

接触フロック形成
においての最大成長
フロック群に吸合さ
れる微フロックの衝
突合-確率 $\bar{P}$ は前二
報⁽⁶⁾⁽⁷⁾の成果を組み合
わせて式-17のよう示される。

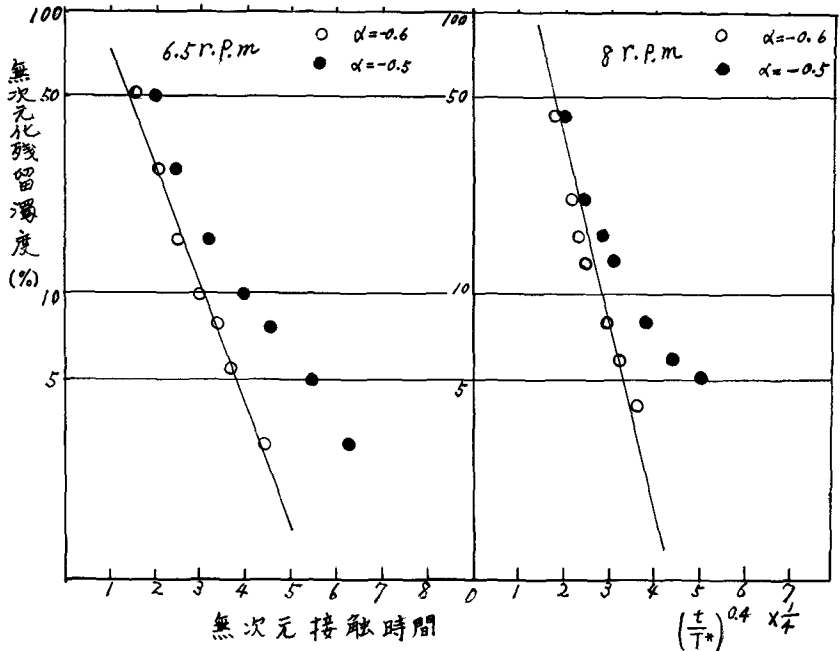


図-7

$$\bar{P} = \alpha_f = \alpha_0 \left(1 - \frac{R}{S+1}\right)^n = \frac{1}{3} \left(1 - \frac{R}{S+1}\right)^n \div \frac{1}{40} \sim \frac{1}{45} \quad \text{----- (17)}$$

更に、成長平衡時においてはその時の累加フロック体積が50%を占めるフロックへの初期粒子集
合数 R_{50-ult} と S との間には $R_{50-ult} \div 0.4S$ の関係がある。累加フロック体積が50%を占めるフ
ロックは体積基準の母フロックの代表と見なすので式-17から指数値は $n \div 5 \sim 6$ となる。

実験におけると同様に数値計算によって求められたフロック群について式-13の関係が成立して
 α_0 。

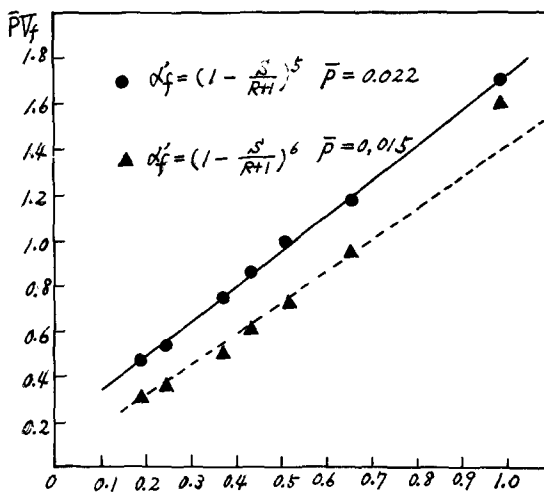


図-8

るかどうかを $\alpha = -0.6$ として $n=5, 6$ として
検討したのが図-8である。図-8より $n=5$
とした場合の方が適合度が高く、しかも各々つ
いての $\bar{P}$ を求めると次のようになる。

$n=5$ では $\bar{P} = 0.022$ 程度 ($\div 1/45$)

$n=6$ では $\bar{P} = 0.015$ ($\div 1/65$)

前報で示した様に、逆混合のない単一組成から
出発した場合のフロック形成においては $n \div 6$
であったが、その場合の衝突合-確率関数は R 倍
粒子を形成するすべての粒子の組合わせに対する
平均値として表示したので、初期粒子と $(R-1)$
倍粒子から R 倍粒子が形成される組合わせが卓越
する接触フロック形成においては n は単一組成か
ら出発する場合より若干小さくなるであろうと推

察される。したがって、既成の大形フロックに微小粒子が吸合される接触フロック形成における衝突-凝集率関数の値は6よりも小さい程度の値をとるものと考えられる。成長平衡時のフロック群の粒度分布はすべて相似であるから上記の関係はすべての条件に対して拡張すること出来る。

4 連続流フロッキュレーター内でのフロック粒度分布と微小粒子消滅速度の測定

4-1 実験装置および方法

連続流フロッキュレーターとして図-1に示したものを用いた。実験条件は原水濁度 50 ppm、硫酸アルミニウム 30 ppm、 $pH=8.0$ に固定し処理流量を 50 l/min, 100 l/min フロック形成攪拌は 8 r.p.m., 10 r.p.m. のそれぞれ2通りとした。実験方法はフロック群粒度分布の測定方法としては、フロック撮影用セルにサイフォンにより直接各フロック形成槽よりフロックを吸入し接写撮影を行なう方法を用いた。微小粒子群の消滅速度は3-2節で示した方法によった。

4-2 連続流フロッキュレーター内での微小粒子群の消滅速度

微小粒子群消滅速度の測定結果を、横軸に槽段数、縦軸に残留濁度をとり示したものが図-9である。図中の△印は $Q=100$ l/min の結果を0を等しくして記入したものである。これらの結果からフロック形成攪拌強度が強い程、槽分割数が増える程微小粒子群の消滅速度は大きくなる。攪拌強度に関して角田も同様の結果を得ている。

次に式-9, 10によって微小粒子群の消滅速度を計算によって求めてみることにする。 $\bar{P}$, V_f を個々に用いずとも式-13によって一括して使用するので、ここでの計算も式-13の形で用いることにする。フロック群が最大成長平衡に達するに十分な攪拌が与えられれば、 $\bar{P}$ は

$1/45$ 程度でありこの時の V_f (V_f^* と記す) が分かれば次のようにしてその槽より前の槽での $(\bar{P}V_f)$ を算定すること出来る。すなわち、式-13より

$$\frac{(\bar{P}V_f)_{T^*}}{(\bar{P}V_f)_t} = \left(\frac{T^*}{t}\right)^{-0.6} \quad \text{----- (18)}$$

故に

$$(\bar{P}V_f)_t = (\bar{P}V_f)_{T^*} (T^*/t)^{0.6} = 1/45 V_f^* (T^*/t)^{0.6} \quad \text{----- (19)}$$

ここで、 T^* : 成長平衡に到るに要するバッチでの実攪拌継続時間 (sec), V_f^* : 成長平衡時のフロック体積, t : 着目している槽での実攪拌時間 ($=V/Q$) (sec)。

$\bar{P} = 1/45$ として E を求めた際の母フロック形成条件が、今回と同一凝集条件でフロック形成時間を30~40分としたので本報において T^* として $Q=50$ l/min での第4段目での滞留時間35分を用

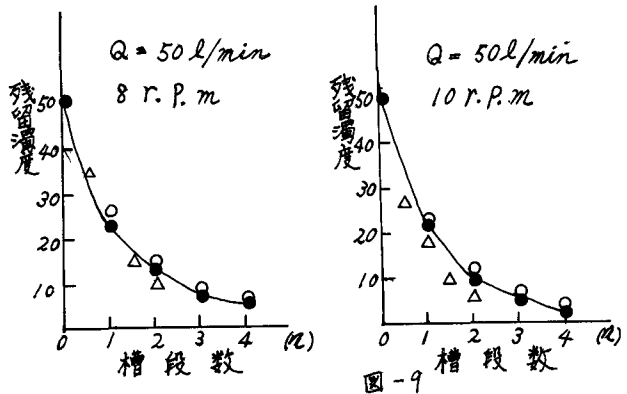


図-9

いる。次節で示す如く第4段では成長平衡に至っている。そこで V_f^* も第4段でのフロック体積を用いることとする。計算の例を $Q=50 \text{ l/min}$ とし、 $P.R.M$ について示すと次のようである。

$E_0 = 1.9 \times 10^{-1} \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{sec}$, $\mu = 1.35 \times 10^{-2} \text{ poise}$ (水温 11°C), $V_f^* = 0.45 \%$, $T/n = 520 \text{ sec}$
諸数値を式-9に代入して式-10中の Kc_4 を求めると、

$$Kc_4 = \frac{9}{\sqrt{15}} \sqrt{\frac{E_0}{\mu}} \frac{V_f^* P T}{n} = \frac{9}{\sqrt{15}} \sqrt{\frac{1.9 \times 10^{-1}}{1.35 \times 10^{-2}}} \times 4.5 \times 10^{-3} \times \frac{1}{4.5} \times 520 = 0.45$$

式-19より Kc_1, Kc_2, Kc_3 を求めると $Kc_1 = 1.04, Kc_2 = 0.64, Kc_3 = 0.54$ となる。したがって、式-10より $C_1/C_0 = 1/2.04$, $C_1 = 50/2.04 = 25.0$, $C_2 = 14.6$, $C_3 = 9.5$, $C_4 = 6.7$ となる。同様の計算を $Q=50 \text{ l/min}$ の $P.R.M$ についても行ない、その結果を図-9に記入したのが図中の○印である。

4-3 連続流フロッキュレーター内でのフロック群粒度分布

バッチフロッキュレーターにおいてはフロック形成時間すなわち無次元攪拌継続時間 m は直ちに求めることが出来るが、逆混合のある連続流フロッキュレーターでは槽内滞留時間に分布があるため m を一般的には適用しえない。しかしながら、成長平衡時の分布は自平衡分布となって初期条件に無関係に決まるはずであるから十分な滞留時間が与えられている槽内でのフロック群の粒度分布はバッチで得られた成長平衡時の分布とほぼ等しいものと考えられる。 $Q=50 \text{ l/min}$ とし、 $P.M$ の第4段(理論滞留時間35分)のフロック群の粒度分布を標準化して、バッチおよび楠田等⁽⁹⁾ のデータと比較したものが図-10である。

今仮りに処理流量を槽容量で除した値をフロック形成時間にとり各槽での m 値を求めると表-1となる。 K_S, d_i, d_{max} すなわち S_m がほぼ等しいと考えられる前報⁽²⁾ の無次元時間累積量曲線の図上に $Q=50 \text{ l/min}$ とし、 $P.M$ で各槽より得られたフロック群の沈降性を示したのが図-11である。

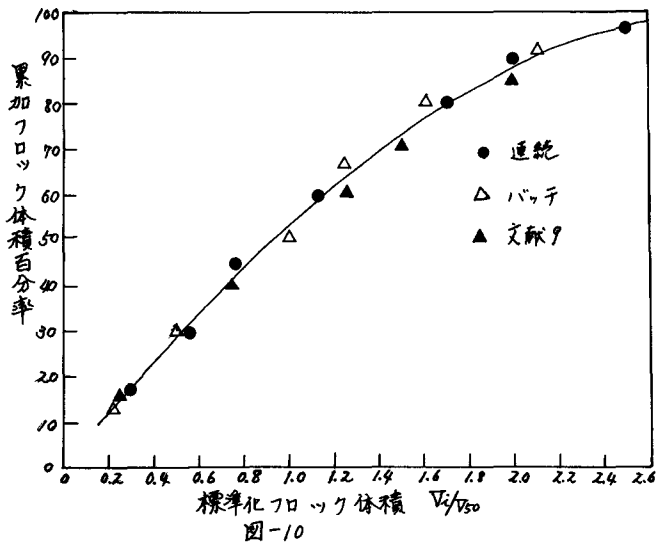


図-10

5 おわりに

本報においては逆混合のある連続流フロッキュレーターにおけるフロック形成について論じた。逆混合のある連続流とバッチとを比べると、前者においては濁質の一部が反応とは無関係な槽内の流束にまぎってフロッ

表-1

$\frac{P.R.M}{n}$	8	10
1	0.35	0.42
2	0.70	0.84
3	1.05	1.26
4	1.40	1.68

ク化されることなく流出して行くことである。本報で用いたようなフロッキュレーターは直列完全混合槽群と考へても良いため、均一次反応と見なし得る微小粒子群の減少は解析的に式-9, 10のような形で求めることが出来る。

逆混合があれば無次元フロック形成時間 m は一義的に用いることが出来ないで、式-9中の $\bar{P}$ と V_f するおち任意の槽内でのフロック群の粒度分布をバッチで求めたような形で得ることは出来ない。ここでは便法として最大成長平衡時のフロック分布が逆混合、バッチを同めず自平衡分布となつて一致するので、式-19に於て任意のフロック形成時間での $\bar{P}$, V_f を一括表示して求めた。

フロッキュレーターから流出して来るフロック群の取扱いは、(1)沈下分離の対象となるフロック群の沈降性と(2)ろ過地の負荷となる微小粒子群濃度とを平行して論じその結果を総合して設計値とするのが現在の所最も適当な方法と考へよう。

本研究に対して文部省科学研究費の助成を受けたことを記すと共に実験に協力頂いた当教室大学院生宇工沢光賢君に感謝申し上げます。

参考文献

- (1) 丹保, 穂積, 渡辺: フロッキュレーターへの合理的設計(1) 水協誌 431号 昭45.8 p. 20~27
- (2) 丹保, 渡辺: フロッキュレーターへの合理的設計(2) 水協誌 441号 昭46.6 p. 2~14
- (3) 宮内: 流系操作と混合特性, 続・新化学工学講座 14 日刊工業新聞社
- (4) Argaman, Y: Turbulence in Orthokinetic Flocculation. Univ of Calif. Berkeley PhD Thesis 1968 Eng. sanit and municipal.
- (5) 参考文献(1)と同じ
- (6) 丹保, 渡辺: フロッキュレーターへの合理的設計(3) 水協誌投稿中
- (7) 丹保, 山田, 穂積: フロック強度に関する研究 水協誌 427号 昭45.4 p. 4~15
- (8) 角田: 凝集攪拌槽の研究(3) 水協誌 413号 昭44.2 p. 2~12
- (9) 楠田, 栗谷, 江副: 平衡状態のフロックの粒度分布について 土木学会第24回年次学術講演会 昭44 p. 347~350

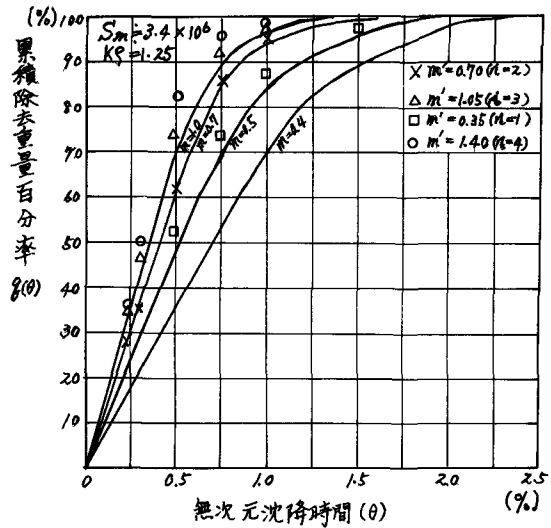


図-11