

(8) 静水中における微粒子の凝集沈降特性と残留濃度算定手法に関する研究

STUDY ON ESTIMATION OF SUSPENDED SEDIMENT CONCENTRATION AND SETTLING CHARACTERISTICS OF FINE PARTICLES IN QUIESCENT WATER

古賀 憲一,* 粟谷 陽一,** 楠田 哲也,** 吉塚 靖浩,** 川崎 剛志**

Kenichi KOGA,* Youichi AWAYA,** Tetsuya KUSUDA**

Yasuhiro YOSHIZUKA,** Takeshi KAWASAKI**

ABSTRACT; The purposes of this study are to investigate the settling phenomenon of cohesive fine particles and to predict the concentration of suspended solids in quiescent seawater. Experiments on the settling of cohesive fine particles (Kaoline) in quiescent seawater were performed. The mass balance equation for the growth of cohesive fine particles by settling in quiescent seawater was computed numerically by the Monte Carlo method. Assuming the similarity of the particle size distribution, a simplified method for the prediction of the concentration of suspended solids has been developed. A factor of both collision and adhesion, an important parameter with regard to the growth of cohesive fine particles, was studied by comparing the results of the experiments and computation. The numerically computed results show good agreement with experimental results. The factor depends on particle diameter. It is shown that fine particles in quiescent seawater are less cohesive. The simplified method is also applicable to predict the concentration of suspended solids by considering the decrease in the factor due to the growth of cohesive particles.

KEYWORDS: FLOCCULATION, SETTLING

1 まえがき

水域に存在する粒子の輸送現象を解明することは、水質汚濁防止や水環境保全を計る上で重要である。粒子の輸送現象の中でも鉛直輸送問題、特に凝集沈降現象については現象が複雑なため解明すべき問題も多いようである。著者らは、凝集性粒子に関する沈降現象の解明、水域における粒子の残留濃度予測を最終目標として種々の実験的検討や理論的検討を加えてきた。^{2), 3), 4), 5)}

本研究は、静止海水中における粒子の凝集沈降特性について実験及び数値計算を行い、凝集沈降現象を左右する重要なパラメータ衝突・付着総合効率の支配的原因について検討を加えたものである。さらに、得られた基礎的知見をもとに、残留濃度分布算定のための簡易計算法を導出し、その妥当性についても検討を加えた。

2 計算方法

2.1 基礎式

静水中に存在する粒子の成長を考慮した物質収支に関する基礎式は次式で示される。

$$\frac{\partial n(w, z, t)}{\partial t} + \frac{\partial(n(w, z, t)v(w))}{\partial z} = \frac{1}{2} \int_0^w F(\tilde{w}, w - \tilde{w}) n(\tilde{w}, z, t) n(w - \tilde{w}, z, t) d\tilde{w}$$

* 佐賀大学 SAGA UNIV. ** 九州大学 KYUSHU UNIV.

$$- n(w, z, t) \int_0^\infty F(w, \tilde{w}) n(\tilde{w}, z, t) d\tilde{w} \quad (1)$$

ここで、 $n(w, z, t)$ ：時間 t 、水深 z における質量 w なる粒子の個数濃度、
 $v(w)$ ：粒子の沈降速度、 $F(w, \tilde{w})$ ：衝突頻度関数で、粒径を基準として表すと、

$$F(d_i, d_j) = \alpha \cdot \frac{\pi}{4} (d_i + d_j)^2 |u_i - u_j| \quad (2)$$

ただし、 α ：衝突・付着総合効率、 u_i, u_j ：粒子沈降速度である。

粒子の沈降量、残留量についての計算値を求めるには、衝突・付着総合効率が既知として(1)式を与えられた初期条件、境界条件の下で解を求めるべきが、直接的に数値解を求めるのは困難である。したがって、本研究では、①モンテカルロ法によるシミュレーション、②粒径分布の相似性を認め計算式を簡略化する、の2通りで計算値を求めた。①の計算を行った目的は凝集沈降現象の解明に重点を置き、②の計算については工学的な観点からみた簡略な濃度分布の算定を目的としている。

2.2 モンテカルロ法による数値計算³⁾

まず、初期分布（個数基準）に従い、所定個数の粒子を1次元的鉛直方向（空間的配置はランダムなので3次元的に配置しても計算結果に与える本質的な違いはない）に配置する。全ての粒子について、所定の沈降速度で沈降させ最小時間で同一レベルに達した2個の粒子を求め、所定の確率で合一させるか否かをモンテカルロ法により判定する。以後、この操作を繰り返し進めて行く。このように、モンテカルロ法は沈降筒内で生じている凝集沈降現象を電子計算機の中で再現させる方法であり、計算結果のばらつきが大きいことと、多くの計算容量、計算時間とを要する欠点を除けば実現象に即した計算を行える等の利点を有している。計算を行うに際しての初期分布、単一粒子の沈降速度等については実測値を用いた。凝集沈降現象を左右する重要なパラメータである衝突・付着総合効率 α は一定値とした場合と粒径の関数とした場合の2通りについて検討した。

2.3 相似分布形を用いた濃度分布簡易計算⁵⁾

粒度分布に相似形を仮定し、(1)式を2つの巨視的な量 $\psi(z, t)$
 $\phi(z, t)$ で表すと、下式の如く表せる。

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} + \frac{\partial \phi}{\partial z} = 0 \quad (3)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + K_1 \frac{\partial (\phi^2 / \psi)}{\partial z} = K_2 \phi^{1+\frac{1}{m}} \psi^{1-\frac{1}{m}} \quad (4)$$

ここに、 m は $u = u_0 (d/d_0)^m$ なる指數、 u, d は各々単粒子沈降速度、粒径である。 $\psi(z, t)$ ($\psi = \int_0^\infty r(w) dw$) は質量 w なる粒子の質量濃度) は粒子(質量)濃度で粒子群の沈降状態(存在量)を示し、 $\phi(z, t)$ ($\phi = \int_0^\infty r(w) v(w) dw$) は粒子沈降流束密度で粒子の成長状態を示すものである。粒子群の質量平均沈降速度を U_c とすれば定義より $U_c = \phi / \psi$ である。このことより、(3)式は ψ に関する収支式であることが解る。(4)式は ϕ に関する収支式であるが左辺第2項は ϕ の沈降による移流項、右辺は成長による沈降フラックスの変化あるいは平均径の変化を示している。 K_1, K_2 は各々粒径分布形状、粒子の凝集性を巨視的に示す。

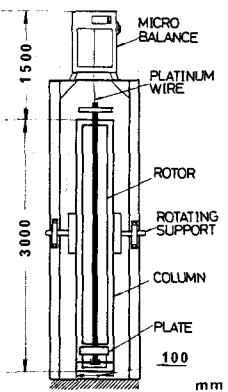


Fig.1 APPARATUS

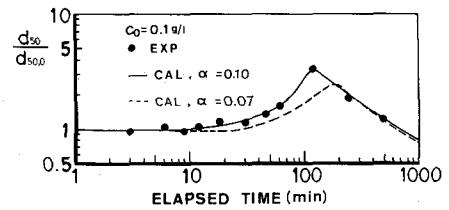


Fig.2 TEMPORAL CHANGE OF AVERAGE DIAMETER

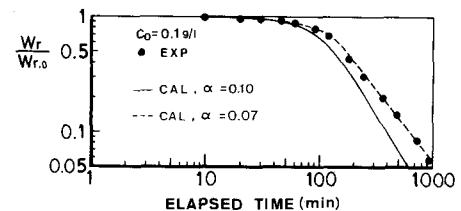


Fig.3 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

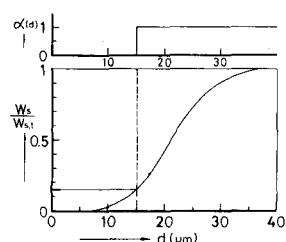


Fig.4 INITIAL SIZE DISTRIBUTION AND FACTOR OF COLLISION AND ADHESION

すパラメータである。この計算法は、粒径分布の形状が相似という制限を受けるものの、粒子群の沈降、成長状態を簡便に求めることができ、工学的には有用な計算手法であろう。粒子の凝集性を巨視的に表す重要なパラメータ K_2 値は、モンテカルロ法で用いたと同様に一定値とした場合と成長に伴って次第に劣化する場合の2通りで行った。

3 実験装置及び方法

Fig. 1に、実験装置の概略を示す。沈降筒は、10cm × 10cm × 3mのアクリル製の角筒であり、濁質を混合攪拌するための攪拌槽も兼ねている。微粒子の沈降質量を得るための沈降皿（皿面積42cm²）を沈降筒下部に設け、沈降皿と沈降天秤を連結する白金線は攪拌軸のパイプ中を通っている。実験に用いた試料は市販カオリンASP-600（平均径0.6μm、比重2.66）である。海水（比重約1.025）は福岡県宗像群津屋崎沿岸（沖合400m）から採水した。海水から懸濁質を除去するために、粒状活性炭及び0.45μmのグラスフィルタで沪過した。実験方法としては、まず鉛直に保った沈降筒に海水を満たした後、一昼夜放置し、予め室温と液温との温度差が生じないようにしておく。つぎに、筒を水平にし、所定の攪拌強度（G=100 1/sec）で攪拌を行い、注入口より濁質を注入する。攪拌終了後、すばやく筒を鉛直にし（この時を沈降開始時刻とする）天秤と沈降皿を連結する。以後、所定時間間隔で沈降重量を読みとり、さらに側壁に設けた採水口より採水を行い、残留濃度分布を求める。また、筒の最下部において、粒径分布、沈降速度を得るために採水を行い、顕微鏡撮影を行った。

4 結果及び考察

4.1 モンテカルロ法による数値計算

Fig.2に沈降筒最下部における平均径の時間変化の一例を示す。Fig.3には、同一条件下での正規化残留濁質量の時間変化を示す。正規化残留濁質量は

$$W_r/W_{r,0} = \int_0^H C(z,t) dz / \int_0^H C(z,0) dz$$

で得られる。Fig.2,3の実線、破線で示される計算値は双方とも、衝突・付着総合効率 α を一定値として求めている。実線（ $\alpha=0.10$ ）について、平均径の計算値と実測値は一致するが正規化残留濁質量については一致していない。残留量の時間変化からは、計算値の方の残留粒子群が実測値に比べ速く沈降していることが解る。正規化残留濁質量の合致性を良好にするためには、 α の値を小さくし、粒子の成長を抑制させる必要がある。 α を0.07と小さくして得られた結果をFig.2,3の破線で示している。正規化残留濁質量については合致する

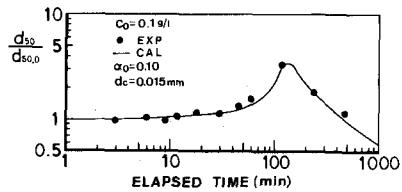


FIG.5 TEMPORAL CHANGE OF AVERAGE DIAMETER

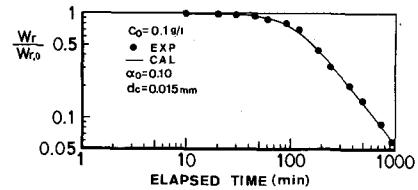


FIG.6 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

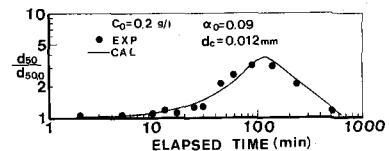


FIG.7 TEMPORAL CHANGE OF AVERAGE DIAMETER

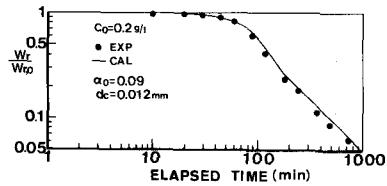


FIG.8 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

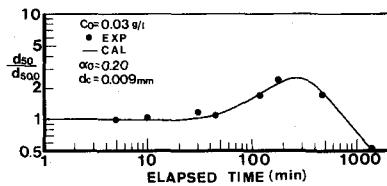


FIG.9 TEMPORAL CHANGE OF AVERAGE DIAMETER

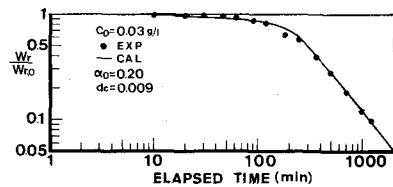


FIG.10 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

が平均径については成長の抑制によって合致しないことが解る。以上のことから、 α の値を一定値として計算を行うと平均径、正規化残留濁質量の時間変化について双方を同時に一致させることは困難と考えられる。したがって、衝突・付着総合効率を一定と考えず何らかの補正を行わなければならぬ。ここでは、従来の成果も踏まえ^{1),3)}粒径 d に依存する関数型を考え次のように置いた。

$$\alpha = \alpha_0 \cdot d(d_i) \cdot d(d_j) \quad (5)$$

α_0 はある定数、 $\alpha(d)$ は粒径 d の関数で α_0 に対する補正係数である。ここで、 $\alpha(d)$ の関数型としては、Fig. 2,3に示す結果から粒径が小さくなる程、衝突・付着総合効率が小さくなるような関数型を考えれば良いことが解る。これにより微小粒子は粒子の成長（平均径の増加）に余り寄与せず、同時にこれら微粒子が濃度減少期に未成長のまま残存することになり、残留濁質量の減少速度が小さくなる。したがって、平均径の合致性を悪くすることなく、残留量の合致性が向上すると期待される。今までの所、微粒子の付着能力が平均的にみて小さくなる原因は充分解明されておらず、各微粒子単体に付着能力の違いがあるのか、微粒子の表面性状が微視的にみて不均一であるのかも判明していない。以上の理由及び第0次近似として $\alpha(d)$ を表現するという立場から本研究では $\alpha(d)$ をFig.4に示すようにある粒径より小さい所で $\alpha(d) = 0$ 、それより大きい所で $\alpha(d) = 1$ となる関数型を与え計算を行った。計算結果をFig.5,6に示す。これらの図から、平均径、正規化残留濁質量についての計算値と実測値は充分合致することが解る。同様な方法で初濃度 0.2 g/l , 0.03 g/l とした時の結果をFig.7~10に示す。これらの図からも平均径、正規化残留濁質量の双方ともよく合致することが解る。濃度分布について、計算値と実測値との比較例をFig.11,12に示す。これらの図から、上層部付近において実測値がわずかに高くなる傾向を除けば全体的に良く合致している。粒径分布形状を最大粒径と

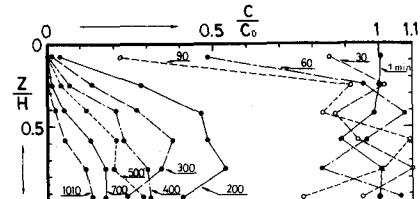


Fig. 11 VERTICAL CONCENTRATION DISTRIBUTION (COMPUTATION)

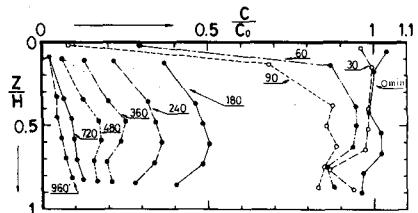


Fig. 12 VERTICAL CONCENTRATION DISTRIBUTION (EXPERIMENT)

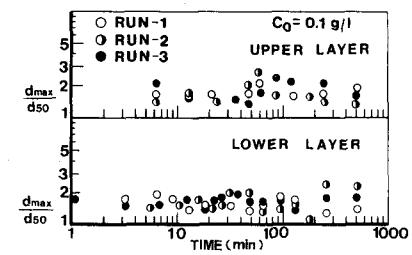


Fig. 13 TEMPORAL CHANGE OF D_{MAX}/D_{50} (EXPERIMENT)

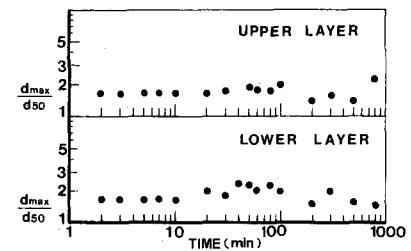


Fig. 14 TEMPORAL CHANGE OF D_{MAX}/D_{50} (COMPUTATION)

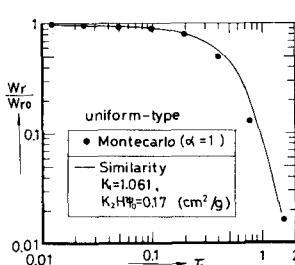


Fig. 16 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

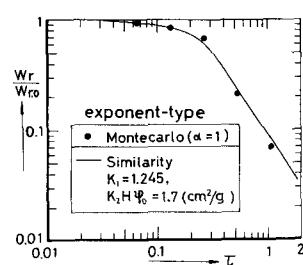


Fig. 17 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

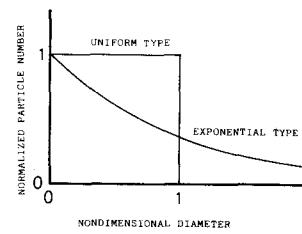


Fig. 15 INITIAL SIZE DISTRIBUTION

平均径との比 dm/d_{50} で表し、その時間変化を Fig. 13, 14 に示す。計算値と実測値ともに多少のばらつきはあるものの双方に大差なく、ほぼ $dm/d_{50} = 1.5 \sim 2.0$ となることが解り、本研究で行った条件の範囲内では粒径分布の形状はほぼ相似となるようである。

4.2 残留濃度分布の簡易計算法

前述したように粒子群の分布形に相似性を仮定すると残留濃度分布等の計算が容易に行える。本計算法で濃度分布等の計算を行う場合に特に注意を払う点は、粒径分布形状を目視的に表す K_1 の決定である。何故ならば、相似形の分布を用いているために粒径分布 (K_1 値) が凝集沈降過程の計算値にかなりの影響を持つからである。この理由により、まず相似分布形の仮定を用いた計算値と相似の仮定を用いない計算値との比較を同一の初期(分布)条件で行ってみた。相似の仮定を用いない計算には前述のモンテカルロ法を用いた。以上の 2 通りの計算を行う際の諸条件は以下の通りである。

- ① 初期分布として、個数基準で一様、及び指數関数的に減少する 2 つの分布形を用いた (Fig. 15 参照)。
- ② 衝突・付着総合効率は 1 とした。
- ③ 粒子の沈降速度は便宜上 $u = u_0(d/d_0)^m$ で与え、 $m=1$, $u_0=1 \text{ cm/sec}$, $d_0=1 \text{ cm}$ とした。

上記条件の内、②及び③は計算を行う上で便宜上設けた値であり、双方の計算値に与える本質的な違いは無い。Fig. 16, 17 に正規化残留濁質量の時間変化を示す。無次元化時間 τ は $\tau = \phi_0 t / (\psi_0 H)$ 。 (ψ_0, ϕ_0) は初期条件としての質量濃度、沈降フラックス、H は総水深)である。モンテカルロ法で求めた結果 (M 法と略記) と相似の仮定を用いた結果 (S 法と略記) との差異は全体的にみて余り見受けられないが、均一初期分布で計算した方に $\tau=0.8$ 付近に違いが認められ、M 法で求めた残存量が S 法のものより 3 割程少ない。これは、 K_1 値を多少小さく見積ったためであろう。初期分布を指數関数として求めた濃度分布の時間変化を Fig. 18, 19 に示す。大粒子の存在量が少ない初期分布から計算を始めているために、凝集沈降により大粒子が生成されても、分布形の相似性が崩れにくく、従って濃度分布の合致性も良好である。通常のフロック形成や自然界に存在する粒子の粒度分布が均一分布 ($K_1=1$) となることは初濃度が高い場合を除けば極めて稀であろう。したがって、 K_1 の値が 1 より大きい場合、本例で示した K_2 値の範囲内では粒径分布を相似として取り扱っても過大な誤差は生じないものと思われる。

本算定法による計算値と実測値との合致性をみるために K_1 , K_2 の値を試行錯誤的に推定すれば良い。具体的な K_1 , K_2 の推定法は以下の通りである。前述したように、 K_1 は粒度分布形状を目視的に表すパラメータであり、かつ分布形は相似

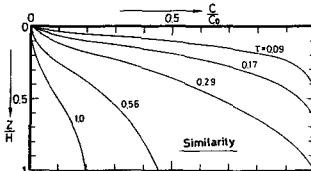


Fig. 18 VERTICAL CONCENTRATION DISTRIBUTION (EXPONENTIAL TYPE)

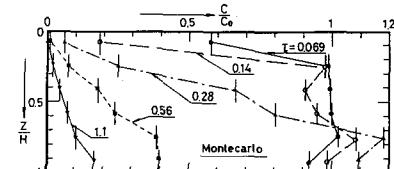


Fig. 19 VERTICAL CONCENTRATION DISTRIBUTION (EXPONENTIAL TYPE)

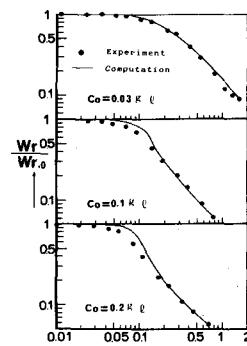


Fig. 20 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

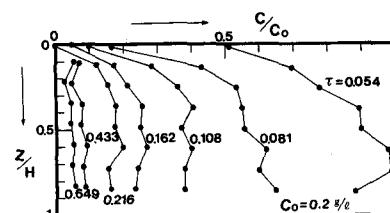


Fig. 21 VERTICAL CONCENTRATION DISTRIBUTION (EXPERIMENT)

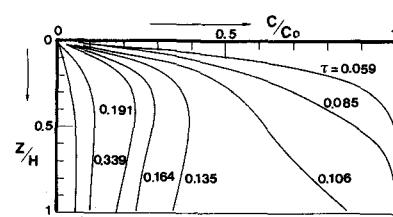


Fig. 22 VERTICAL CONCENTRATION DISTRIBUTION (COMPUTATION)

形としているために、濃度減少期における正規化残留濁質量の時間変化は K_1 の値が支配的となる。換言すれば、両対数紙上で正規化残留濁質量の減少勾配はほぼ K_1 値 ($u = u_0(d/d_0)^m$ の指數 m によっても若干変化する) によって決定される。 K_1 の値が求まれば、時間軸の移動によって K_2 値は容易に求められる。正規化残留濁質量について実測値との比較結果を Fig. 20 に示す。計算条件の K_1 , K_2 値を Table. 1 に示す。初濃度が低い場合には実測値と計算値は良く合致するが、初濃度が高くなるに従い合致性はやや悪くなる傾向にあり、成長期において計算値の方が実測値に比べ若干コブ状で減少する。Fig. 21, 22 に濃度分布の時間変化の一例を初濃度 0.2 g/l について示す。これらの図において、成長期では同一時刻における濃度分布にやや不一致が認められる。濃度減少期では計算値の方に濃度反転層が生じており、実測値には明瞭な濃度反転層が認められず空間的に一様な分布で沈降している。初濃度の高い場合、この不一致を改良するには成長期で計算値の成長速度をやや大きくし、濃度減少期では逆に成長速度を次第に低下させるようにする必要がある。このことは、前述したように、衝突・付着総合効率を一定とし、モンテカルロ法で求めた計算値と実測値を比較して得られた結果と同様の傾向である。したがって、本研究では、濃度減少期における成長速度の低下を考慮するために K_2 は任意時刻、任意場所に存在する粒子群の平均的な凝集性を表すパラメータとして、 K_2 に関する付加的な基礎式を次のように与えた。

$$\frac{\partial K_2}{\partial t} + \frac{\phi}{\psi} \frac{\partial K_2}{\partial Z} = -\beta K_2 \left[K_2 \psi (\phi/\psi)^{\frac{1}{m}} \right] \quad (6)$$

左辺は、粒子群の質量平均沈降速度で移動する座標系からみた粒子群の凝集性の時間変化(実質微分)である。右辺のカギ括弧の中は、衝突の代表速度を表していることから K_2 の時間的变化はこの衝突の代表速度と K_2 との積(成長の代表速度)に比例するものとした。 β はその比例定数である。このように、 K_2 の定式化を行った理由は、モンテカルロ法でも検討を加えたように微細な粒子が次第に取り残される傾向を表現するためである。計算結果を Fig. 23, 24 に示す。計算に用いた諸数値を Table 2 に示す。Fig. 23においては、Fig. 20 にみられたような成長期のコブ状の減少傾向は余り無く、合致性からみた改良が認められるようである。Fig. 24 には濃度分布の計算例を初濃度 0.2 g/l について示している。Fig. 24 と Fig. 21 及び 22 を比較して解るように、顕著な濃度分布の反転層は認められず、一様な濃度分布に近い状態が良好に再現されており、実測値にかなり似た濃度分布形となっている。

今回は、モンテカルロ法による計算値と実測値を比較することにより、双方の合致性を良好にするためには微細な粒子の凝集性を低下させなければならないことを指摘し、その知見をもとに従来の簡易濃度算定式を改良し、その適用性について検討を加えた。今後、微細粒子の凝集特性について、現象解明の立場から検討を加えたい。

本研究を行うに際し、多量の海水を提供して下さいました九州大学付属水産実験所の古市政幸助手並びに関係職員の方々に心から御礼申し上げます。数値計算には九州大学大型計算機 (FACOM M-190) を使用した。

なお、本研究の一部は文部省科学研究費（一般研究及び総合研究）の補助を受けて行ったものである。

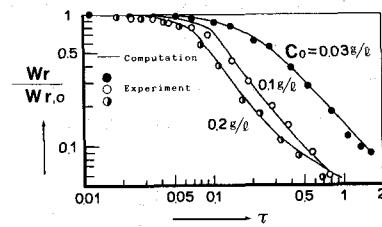


Fig. 23 NORMALIZED TOTAL SUSPENDED SEDIMENT MASS

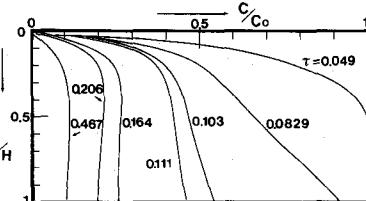


Fig. 24 VERTICAL CONCENTRATION DISTRIBUTION (COMPUTATION)

Table 1 VALUES OF K_1, K_2

$C_0 (\text{g/l})$	0.03	0.1	0.2
K_1	1.45	1.45	1.45
$K_2 H \psi_0 U_{co}^{\frac{1}{m}-1}$	2.0	10.0	12.0

Table 2 VALUES OF K_1, K_2, β

$C_0 (\text{g/l})$	0.03	0.1	0.2
K_1	1.5	1.4	1.6
$K_2 H \psi_0 U_{co}^{\frac{1}{m}-1}$	3.0	12.0	20.0
β	0.20	0.25	0.25

参考文献

- 1) 丹保, フロック形成過程の基礎的研究(I)
水道協会雑誌, 372号, 1965. 9
- 2) 粟谷, 楠田, 古賀, 凝集沈降に関する基礎的研究(II)
第14回衛生工学研究討論会, 1978. 1
- 3) 古賀, 萬, 楠田, 粟谷, 凝集沈降に関する数値計算と衝突・付着総合効率について
第16回衛生工学研究討論会, 1980. 1
- 4) 古賀, 粟谷, 楠田, 塩水中における微粒子の成長と沈降特性に関する基礎的研究
第18回衛生工学研究討論会, 1982. 1
- 5) 古賀, 粟谷, 楠田, 島岡, 静水中における微粒子の沈降特性と残留濃度算定手法に関する研究
衛生工学研究論文集, 19卷, 1983. 1