

〈ノート〉

外筒回転型クエットデバイスで形成される一様な
層流せん断流れ場におけるアルミニウムフロクの構造変化福田(早見)美意¹⁾, 毛受卓¹⁾, 出健志¹⁾内田竜朗²⁾, 櫻井進³⁾, 足立泰久³⁾¹⁾ 東芝インフラシステムズ(株) インフラシステム技術開発センター
(〒183-8511 東京都府中市東芝町1 E-mail: mii.fukuda@toshiba.co.jp)²⁾ 東芝エネルギーシステムズ(株) エネルギーシステム技術開発センター
(〒230-0034 神奈川県横浜市鶴見区寛政町20-1 E-mail: tatsu.uchida@toshiba.co.jp)³⁾ 筑波大学 生命環境科学研究科
(〒305-8572 茨城県つくば市天王台1-1-1 E-mail: adachi.yasuhisa.gu@u.tsukuba.co.jp)

概要

固液分離性に優れた凝集物(フロク)の形成は, 水処理機器の設計において重要であり, 様々な攪拌・薬注条件の組み合わせが検討されてきた。しかし, インペラ型攪拌機等の攪拌では複雑な乱流状態になるため, 流れ場で生じるせん断速度がフロク形成から破壊に至る現象を明瞭に捉えた例は報告されていない。本研究では, 単純な層流状態で攪拌を実現する外筒回転型クエットデバイスを製作し, 可視光による撮影を行った。結果, 装置の適合性を把握すると共に, 流れ場で形成されたバルキーなフロクが次第に高密度化する様子を確認した。

キーワード: 凝集, フロク構造, ポリ塩化アルミニウム, せん断流れ場, 画像解析

原稿受付 2022.10.21 原稿受理 2022.12.22

EICA: 27(4) 82-90

1. 背景と目的

上水・水処理分野において, 凝集は, 沈澱分離をはじめとした固液分離の前処理操作として重要なプロセスである。懸濁粒子を含む被処理水に凝集剤を添加・攪拌することにより, 初期状態において分散している微細な懸濁粒子同士は, 互いに衝突, 付着し合うことにより大型化し, 肉眼でも容易に識別できるようなサイズのフロクに成長する。この時, 後段の固液分離(沈澱や脱水, 膜ろ過)の機構に応じ, 分離しやすいフロクを形成する技術開発が求められる。この視点から, フロクの大きさや強度などの物性を凝集条件との関係で明らかにすることが注目され, フロクの形成過程, 沈降速度, フロクを含む濁水の流動特性などの多くの研究が報告されている。丹保ら¹⁻³⁾は, カオリナイトを濁質とする模擬水と硫酸アルミニウムを主成分とする凝集剤を用いた実験を行い, 実際の上水処理を模した急速攪拌混合に続いて緩速攪拌によって成長させたフロクを単一の状態で取り出し, その沈降挙動を拡大撮影して得たフロクの沈降速度を, フロク径の関数として定義した。沈降速度の測定結果は, ストークスの沈降速度式を適用することにより, 沈降に有効となるフロクの密度がフロク径の増大

に伴ってべき乗の関係で減少することが見出され, フロク密度関数と名付けられた。このことは一見ランダムに見えるフロクの構造形成に, フロク密度がフロク径の関数として示されるある一定の法則があることを意味する。さらに丹保は, 実験を続け, フロク密度関数を凝集剤に含まれるアルミニウムイオンの濃度と懸濁粒子濃度の比であるALT比で整理し, 化学条件によってフロクの形態が系統的に変化することを指摘した。一方, 楠田⁴⁾は, フロク形成時の急速攪拌時の攪拌強度の違いがフロク密度関数に影響することを報告し, フロクの構造形成における攪拌強度の重要性を指摘しているもののその機構解明には至っていない。また, 東谷ら⁵⁾は, ポリスチレンラテックス(PSL)粒子からなる懸濁液に, 粒子と反対符号を有する合成高分子電解質の凝集剤を添加して攪拌すると粒子荷電が中和された条件下においてフロクの固液分離の効率が最大となり, さらにPSL粒子濃度が高い濃厚状態においては著しく高密度のフロク(ペレット)が形成されること, またその形成には, 流れ場の存在が必要であることを報告した。さらに, 足立ら⁶⁾は, カオリナイトの懸濁液にアルミニウム塩を添加して, pHによる水酸化アルミニウムの形態変化を踏まえ, 荷電量が0に近づくpH8前後において

不溶性の析出物がゲル化し、この存在がカオリナイトの凝集に大きく関わっていることを関連付けた。

このように、丹保らによる ALT 比による凝集剤注入条件、楠田による流れ場とフロック形成の影響の指摘、東谷らによる流れ場と電解質の薬注条件を最適値に整えると形成されるペレットフロックの発見、足立らによる不溶性の析出物の関与と pH の具体的検討など、様々な研究がなされてきた。しかし、固液分離に有効な高密度フロックの形成条件とそのプロセスは明らかにされていない。そこで、高密度フロックの形成を目的とし、凝集プロセスを単純化する試験系の検討を試みた。

フロックは複雑な形状をとり、もろく壊れやすい性質を有していることから、画像撮影・解析による測定手法が適している。実体顕微鏡レベルの可視化観察が可能であるものの、撮影記録を定量化するためには工夫が必要である。水中のフロックの可視化において、当初、天井照明による予備試験を行ったが、試験水を封入した二重円筒の上下方向に明るさの分布が生じた。天井照明による上下方向の輝度分布は、フロックの粒径や形状を捉えるうえでの誤差になると考えられたため、背景照明による撮影⁷⁾を選択した。背景照明による画像撮影の課題^{8,9)}は、以下のようなものがある。

- ・極端に微細な粒子や粒子数が多すぎる場合に検知できない
- ・奥行方向に分布がある場合に粒径の計測誤差が生じる
- ・奥行方向を含む3次元形状を把握できない
- ・撮影素子と焦点深度内に複数フロックがある場合、近接して1つのフロックに見えてしまうことがある
- ・微細粒子が疎ではあるが集まって、目視では1つのフロックであるのに、解析上の輝度閾値の設定から複数の小粒子としてカウントされてしまう

このような課題を踏まえながらも、背景照明の特徴である上下方向の輝度分布が生じにくい点を評価し、背景照明を選択した。背景照明では、画像解析において二値化する際、フロックと背景との輝度差が大きく二値化によるフロック径の解析誤差が軽減できることや、フロックの形状を明瞭に捉えられるなどの利点がある。以上を踏まえ、水中で数 μm から数 mm まで急激に成長しながら構造変化していくフロックの計測には、分散する一定の大きさ以上のフロックを捉えることのできる背景照明を用いた画像撮影による粒子計測技術が適していると考えられる。

本研究では、時間経過に伴うフロック構造の変化を把握するため、流れ場を一様に制御した10分程度の試験が必要であると考え、外筒回転型の二重円筒装置であるクエットデバイスを作成した。急速攪拌に代表される既往研究では、攪拌時間は1分程度であり、そ

の後は緩速攪拌を行うため、攪拌によって生じる流れ場から受けるせん断速度と時間の関係が明らかになっていない。クエットデバイスの内外筒の間に、高い一定のせん断速度を与える層流状態を作り、カオリナイトと凝集剤が結合して、衝突律速によって基礎的なフロックが形成される初期凝集から、成長と破壊、再配列といったフロック構造の変化を連続的に測定可能な試験系を構築した。装置内で実現される一様なせん断速度の単純な流れ場におけるフロックの構造形成の過程を画像撮影によって観察し、フロックの成長や成長の限界、構造の再配列などの状態の遷移を粒径やその分布の経時変化として評価した。また、実験方法として新たに採用した背景照明を用いた撮影から得られた情報を、フロックの粒径分布や構造の経過に対応付けて考察し、その有効性を明らかにする。

2. 方 法

2.1 クエットデバイスと撮影機器

フロック構造の経時変化を測定する回転試験は、外筒回転型の二重円筒装置であるクエットデバイスとハイスピードカメラを用いて行った。Fig. 1 に装置構成を示す。クエットデバイスは横置きで、正面にハイスピードカメラを、背後にLEDフラット照明を置く背景照明方式で撮影した。外光の影響を避けるため、クエットデバイスとカメラは暗幕で覆った。

クエットデバイスは二重円筒構造をしており、内筒と外筒の間に試験水を封入した。外筒の内寸直径 R は 11.5 cm 、内筒の外寸直径は 9 cm で、間隙 d_{gap} は 1.25 cm であった。円筒の長さは 26 cm であり、間隙の容積は約 1 L であった。間隙内に発生する水流を安定させるため、内筒は固定で外筒のみが回転する仕様

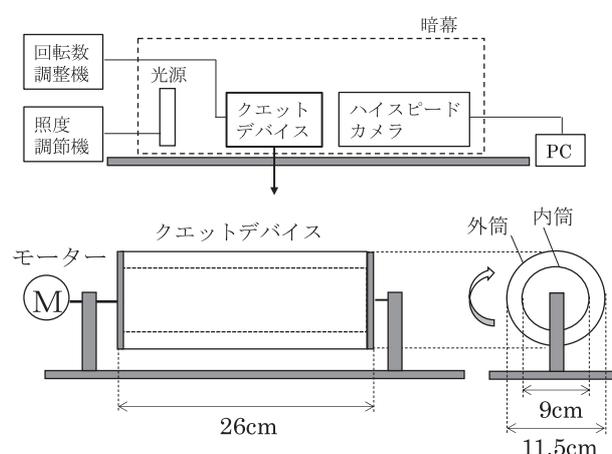


Fig. 1 The equipment consists of the couette device with a rotating outer cylinder, a high-speed camera, and background lighting. A simple shear flow field is generated in the gap between the inner and outer cylinders. Structural changes in the floc can be photographed from the outside of the cylinder.

であり、回転時、間隙には、上向きの一様なせん断速度が生じている。式[1]において、ニュートン域におけるニュートンの粘性法則より、本試験における回転数 60 rpm で外筒を回転させた時、 0.029 N/m^2 のせん断速度が発生している。

$$\tau = \mu U/h \quad \dots \text{式}[1]$$

τ : せん断速度 (N/m^2)
 μ : 水の粘性係数 ($\text{N}\cdot\text{s/m}^2$)
 U : 壁面の移動速度 (m/s)
 h : 移動壁面からの距離 (m)

内外筒はいずれも透明アクリル製であり、外側から間隙内の流動状態を撮影可能とした。撮影位置は、二重円筒の上下方向の中心位置かつ、内外筒の間隙の中心として焦点を絞り、焦点付近の粒子を撮影対象とした。歪曲収差の影響を少なくするため、光源と二重円筒の中心と、撮影素子が直線で結ばれ、かつ光源、回転軸を通る面と撮像素子が平行になるように据付調整をした。内筒の表側（ハイスピードカメラ側）が撮影対象であり、内筒の裏側（背景照明側）に存在する粒子は計測誤差となるため、内筒の内壁に白色不透明の樹脂製フィルムを貼り、写り込みを防止した。モーターの回転数 N は可変で、予備試験の結果を基に、本試験は 60 rpm ($G=57.8 \text{ s}^{-1}$) で行った。攪拌強度 G は、式[2] で計算した¹⁰⁾。

$$G = 2\pi NR/60d_{\text{gap}} \quad \dots \text{式}[2]$$

G : 攪拌強度 (s^{-1})
 N : 回転数 (rpm)
 R : 外筒の内寸 (cm)
 d_{gap} : 内外筒の間隙幅 (cm)

撮影は、ハイスピードカメラ (Photron FASTCAM Mini) を用い、撮影ソフトは Photron FASTCAM Viewer を用いた。回転試験の撮影条件は、シャッター速度 $1/10000 \text{ sec}$ 、フレームレート 2000 fps 、撮影頻度 1 回/2 秒で自動撮影を行った。回転開始時を 0 秒とし、合計 600 秒間撮影した。画像サイズは $1024 \text{ px} \times 1024 \text{ px}$ 、スケールは 0.04122 mm/px であった。スケールは、内外筒の間隙幅の $1/2$ の位置で決定した。裏面に高さのある矩形物を張り付けたステンレススケールを用意し、内筒の外壁に固定し、水を封入した状態でステンレススケールを撮影した。撮影画像と画像サイズから、 1 mm に相当する px 数を算出してスケールを求めた。

2.2 試験水と凝集剤

試験水は、河川水の懸濁物質を模擬し、カオリナイト (CAS No. 1332-58, 関東化学) 100 mg/L を水道水に分散させた。カオリナイトは、Si を主成分とし、平均粒径 $5 \mu\text{m}$ 程度の微細な鉱物粒子である。Photo. 1 に実際に使用したカオリナイトの走査型電子顕微鏡 (S-3400N, 日立ハイテク, SEM) 写真を示す。SEM で拡大すると、1 つ 1 つの粒子は凹凸形状をしていて、個々の粒子はカオリナイト特有の板状の多形構造を確認できるが、大きさにはばらつきがあり、部分的に凝集していることが確認できる。Fig. 2 に、レーザー回折法に基づく実験に使用したカオリナイトを水に分散させた時の粒度分析結果 (SALD3100, 島津製作所) を示す。カオリナイトの粒径分布は、 $0.291 \sim 45.859 \mu\text{m}$ のブロードな分布形状であり、累積頻度 50% 粒径である D_{50} は、 $4.858 \mu\text{m}$ であった。本実験で採用した撮影系では、粒子として検知できる下限値が $40 \mu\text{m}$ 程度なので、凝集試験開始直後の凝集が進行していない状態では、検出限界以下の大きさのフロックは画像として検知されない。しかし、写真に示されているように時間の経過とともにフロックが成長すれば、画像として認識される割合が大きくなる。

水道水は、pH $7.4 \sim 7.5$ 、水温 $20.0 \sim 23.0 \text{ }^\circ\text{C}$ であった。クエットデバイスが回転時に間隙内に発生する気

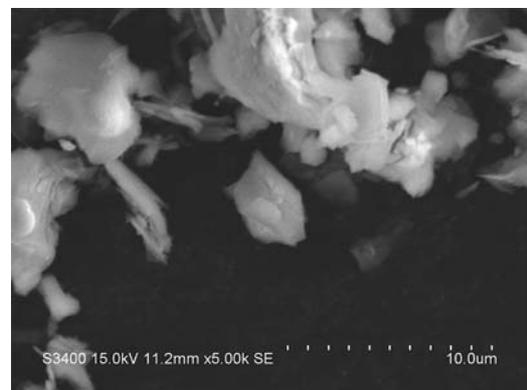


Photo. 1 Image of kaolinite by a scanning electron microscope.

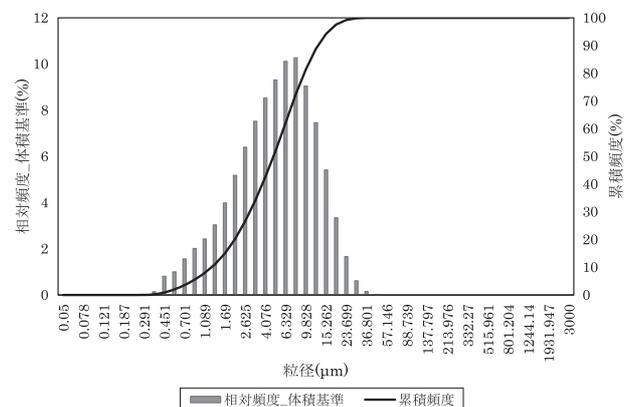


Fig. 2 Particle size distribution measurement result of kaolinite sample. The average particle size is $5 \mu\text{m}$.

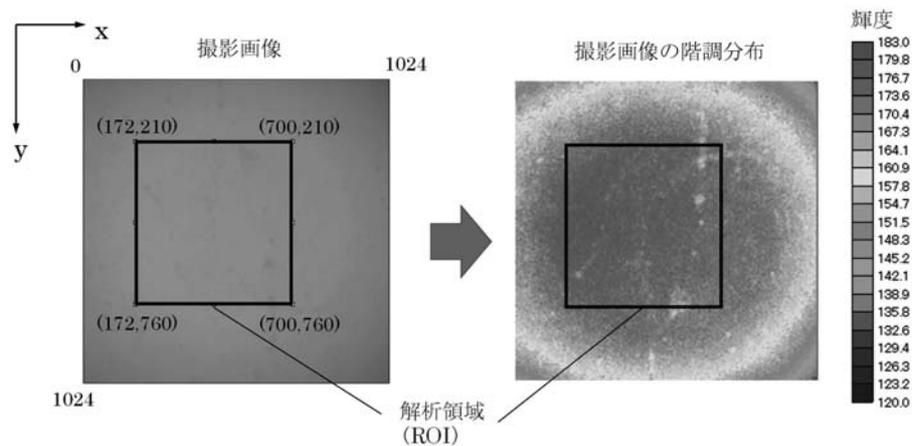


Fig. 3 Gradation distribution of captured image (Graph-R) and analysis area (ROI). Image size is 1024 pixels×1024 pixels. This ROI is the range of the black frame.

泡は、画像に映り込んで撮影の阻害となるため、水道水はあらかじめ超音波を照射しながら吸引処理を10分間行い、脱気した。凝集剤は、上水処理で汎用的なポリ塩化アルミニウム（多木化学 PA250A, PACl）を使用した。PACl はあらかじめ超純水で希釈し、50 mg/L となるよう、カオリナイト懸濁液を満したクエットデバイスの外筒の注入口から添加した。クエットデバイスは、PACl 注入直後に回転と同時に撮影を開始した。

2.3 画像解析

画像解析は、オープンソース・パブリックドメインの画像処理ソフトである imageJ¹¹⁾ を用いて行った。imageJ は、生物学をはじめとする研究開発で広く利用されており、二値化によって得られる対象物のピクセル値から、形状値や個数を数値化することができる。撮影画像は、RGB 形式で取得し、8 bit 形式に変換し画像解析に供した。解析領域 (region of interest: ROI) は、**Fig. 3** に示すように、光源の明るさが均一でピントが合っている、528 px×550 px の領域を解析した。光源強度の均一性は、オープンソースソフトの GraphR を使い、階調分布が均一で、ピントが合った領域を抽出することによって保たれるように工夫した。imageJ による解析では、検知されたフロックには ID が付与される。解析項目は、単一粒子あたりの投影面積 A 、粒子あたりの輝度平均 (Mean gray value)、ROI あたりの粒子数 (個/cm²) とした。フロック径は円相当径で表すこととし、式[3] を使い、投影面積 A から円相当径 d (circle equivalent diameter: CED) に換算し求めた¹²⁾。Chigier⁷⁾ の報告では、可視光源では、収差の影響から 10 μm 以下の粒子の測定には誤差を含みやすいことが指摘されている。本研究で採用した計測法においても、レンズの倍率と解析に採用するピクセルとの関係で、粒子の大きさの測定精度の信頼性を担保する下限値が存在する。ここでは、1 μm

クセルの単位として 46.5 μm を採用し、それ以上の粒子画像を解析した。この方法によっても、カオリナイトと PACl が結合されてフロックが形成される初期の過程の様子や、破壊されて微細なフロックに分裂していく様子を捉えることができる。

$$d = 2\sqrt{(A/\pi)} \times 10^3 \quad \dots \text{式}[3]$$

d : 円相当径 (μm), A : 投影面積 (μm^2)

凝集過程では、フロック径は不均一でブロードな分布を持っていることや、周軸方向の撮影タイミングに伴うばらつきによる影響を軽減するため、抽出した時刻に撮影したフロックの画像およびその前後 2 秒間に撮影したフロックの画像を平均化する形で粒径データとした。具体的には、3 枚の画像のフロック径を合わせて加算的に平均化し、粒子数はカウント数の合計を 3 倍の ROI 面積で除して正規化した。ただし、開始直後である 2 秒後に限っては、フロック径や粒子数は急速に変化することから、1 枚の画像を 1 データとした。フロック径の統計的解析は、円相当径 d の最大値を D_{max} (μm)、累積頻度分布 90% 径を D_{90} (μm)、同 50% 径を D_{50} (μm) とした。 D_{90} と D_{50} は、個数基準、体積基準について算出した。

3. 結 果

3.1 撮影画像

Photo. 2 に回転開始から 2, 60, 80, 120, 180, 240, 300, 360, 420, 480, 600 秒後の撮影画像を示す。**Photo. 2** は、8 bit 形式に変換したグレースケール画像であり、画像解析に使用した。参考のため画像には、クエットデバイスの回転方向を示す矢印と、5 mm のスケールを併記した。画像は、背景は灰色で、水中のフロックは黒い影として映っていた。試料を装置内に投入する

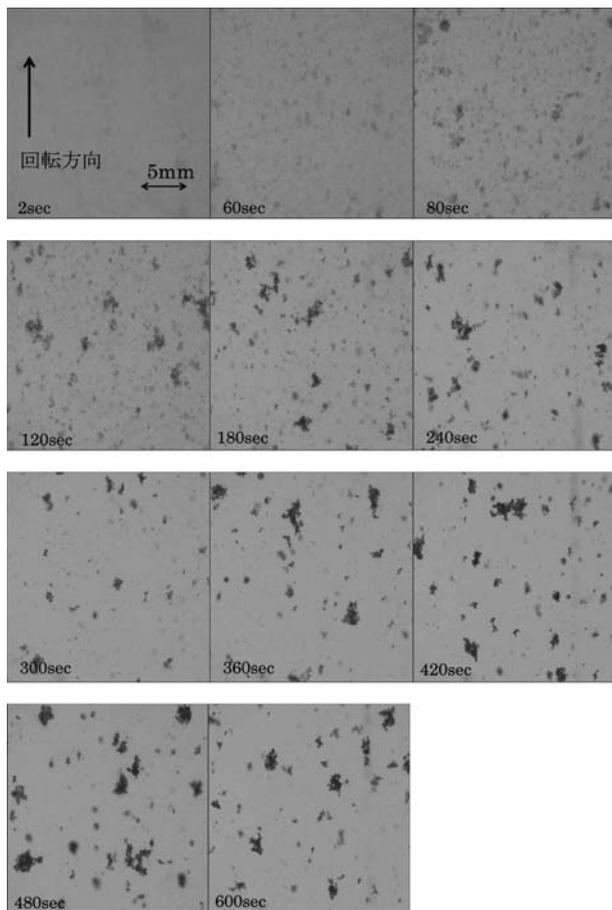


Photo. 2 Photographed images of flocs from 2 to 600 seconds after the start of the test. Due to the background lighting, flocs appear as black shadows.

際に、試料が攪拌され、それに伴い凝集がある程度進行してしまう。従って、試験開始直後から凝集反応は開始しているが、凝集初期はフロック径が微細であるため、画像解析には明確に検知されなかった。開始60秒後には、薄い灰色の輪郭の不明瞭なフロックが形成しはじめ、フロックが画像解析で検知されるサイズに成長していた。80秒後には、フロックが成長し、大きなフロックが複数存在していることが確認できた。また、120秒後には、さらにフロックが成長し、大きなフロックの数が増加した。180~300秒後には、120秒後と比べて、大きなフロックと微細なフロックの見かけの存在割合に大きな変化はなく、初期の凝集反応は、80秒、あるいは120秒までの段階で完了していると推測された。フロックは、出現時は薄い灰色であったが、徐々に灰色から黒色に変化した。300秒以降は、フロックの粒径分布に大きな変化はなく、粒径は維持された。

3.2 フロック代表径と粒子数の経時変化

現象に対し支配的な物理機構を考察するため、Photo. 2の画像を解析し、 D_{max} 、個数基準の累積頻度分布の代表径と単位面積あたりの粒子数の経時変化を

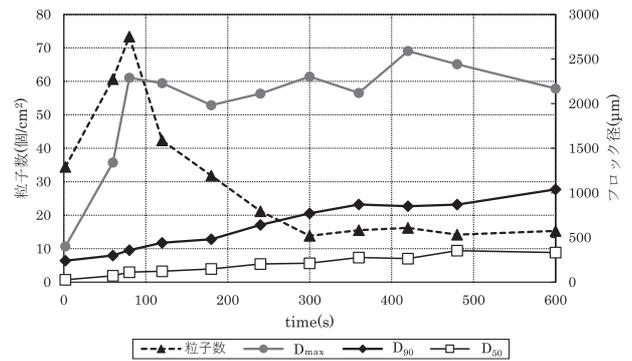


Fig. 4 (a) Changes in floc diameter and number of particles over time (number of particles basis)

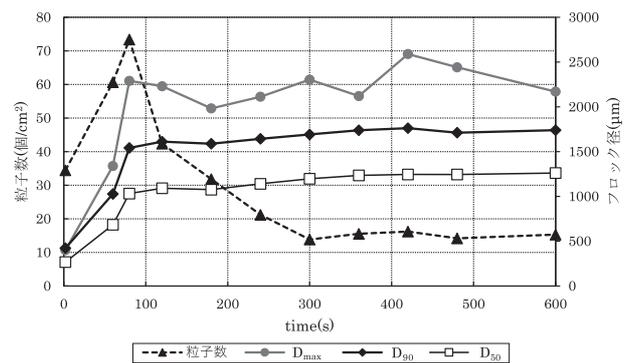


Fig. 4 (b) Changes in floc diameter and number of particles over time (volume basis)

表した図を Fig. 4 (a)、体積基準の代表径で表した同様の図を Fig. 4 (b) に示す。第一縦軸を単位面積あたりの粒子数 (個/cm²)、第二縦軸をフロック径 (μm)、横軸を経過時間 time (s) とした。Fig. 4 (a) において、開始直後から80秒間に、 D_{max} は400 μm から2290 μm と5倍以上に急速に成長した。一方で D_{90} と D_{50} は、経過時間に対して緩やかな増加傾向を示し、80秒以降もこの傾向は変わらなかった。 D_{max} と D_{90} の差異が2倍以上と大きいことから、試験系に存在するフロックの大半は300 μm程度であり、2000 μmを超える大型のフロックはごくわずかに存在することが示唆された。個数基準の代表径による評価は、多数の微小フロックによる影響が大きいと考え、次に、体積基準の代表径による評価を行った。Fig. 4 (b) において、試験開始から80秒間に D_{90} は400 μm から1500 μm、 D_{50} は270 μm から1000 μm と、4倍程度に成長した。この時粒子数は、34 個/cm² から73 個/cm² と、2倍に増加した。開始直後から粒子数は単調に増加していたが、80秒を境に、粒子数は増加から減少に転じた。画像解析には46.5 μm以下の粒子は検知されていないが、開始当初から衝突律速によるフロック形成に伴い粒子数は減少し続けている。80秒では D_{max} はほぼ試験における最大径近くに成長しており、凝集開始時から続くフロックの出現に伴う粒子数の増加が落ち着いたためと考えられる。80秒においてフロックは限界

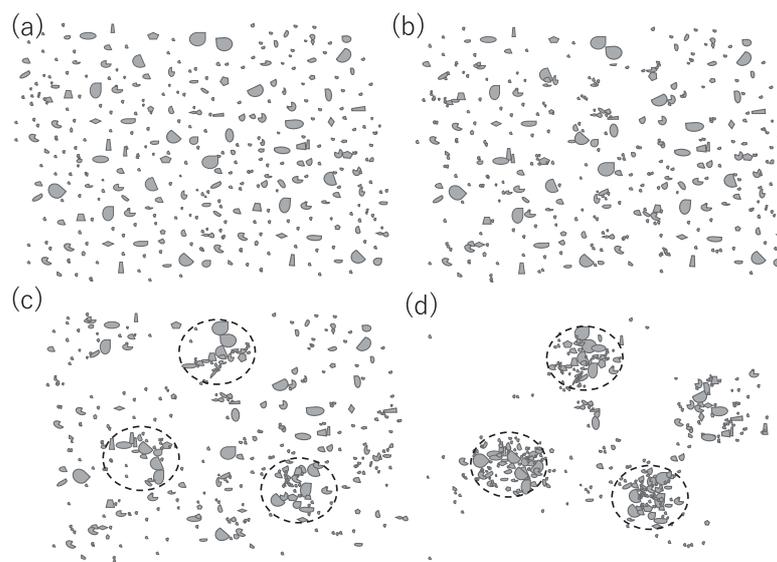
粒径を超えるサイズまで成長して、再配列に伴う粒子数の減少が開始されたため、以降は粒子数が減少した。80秒～300秒には、粒子数が減少しているにも関わらず D_{\max} が 2000～2600 μm の範囲で推移し、 D_{90} が 1500～1700 μm の範囲に維持されていることから、80秒までが初期段階の凝集反応で、以降は成長と破壊、破壊によって生じた微細片であるクラスターの取り込みによる再配列と、再配列の繰り返しによるフロック径の収束が起きていたと考えられる。また、本試験条件において、せん断速度が定めるフロックの最大径は、2000～2600 μm であったことも読み取れる。300秒以降は、 D_{\max} は、フロック1粒の測定値であるため多少ばらつきが見られるが、増加傾向になく、2000 μm 付近に留まっていた。 D_{90} 、粒子数は一定値で推移しており、成長と破壊、再配列の平衡状態にあった。このように、攪拌強度を変更せずに一定の攪拌強度を長時間継続することで、フロック構造は変化していた。**Photo. 2** に示した写真からも読み取れるが、目視による観察では、クエットデバイス間隙中を流動するフロックは、どちらかという、流れ方向に長く配向しているように見える。このことは別の試料を用いた系での凝集において確認されている¹⁰⁾。以上より、**Fig. 4 (a)** と **Fig. 4 (b)** の代表径の算出結果を比較すると、 D_{90} 、 D_{50} に違いが見られた。代表径を個数基準で整理すると、フロックの全体的な成長は把握できるものの、微小粒子の個数の影響を受け、フロック径の変化が捉えにくくなっていた。体積基準で代表径を整理すると、フロックが出現して最大径に達するまでのフロック径の変化や、その後、フロック径が維持される様子を観測でき、凝集プロセスを把握しやすい特徴があった。

試料の粒径分布が比較的均一な場合や、微小粒子に着眼した現象を捉える場合には個数基準による代表径が適している。今回のような将来的に水処理への適用を目的とする試験系では、粒子体積と濁度等の水の濁りの指標との関連性が重要視され、体積基準の代表径を用いた方が現象を捉えやすいと判断できる。

4. 考 察

4.1 フロック構造とフロック径、粒子数の関係

Fig. 5 に、一定のせん断流れ場におけるフロック粒径分布と形成されるフロックの構造が変化していくイメージを示す。初期のカオリナイト懸濁液は (a) に示されるような多分散状態であり PACI が注入され、攪拌が開始されると (b) に示すよう周囲のフロック同士が流れ場の作用により接近衝突し順次大きなフロックへ成長する。画像解析では、撮影系によって定まるある大きさ以上のフロックが認識されるので、図に示されているような最も小さな粒子はカウントされない。しかし、フロックが成長し一定の大きさ以上になると、一個の存在として認識される。衝突したフロックのクラスター同士は、結合し合うため、嵩張ったバルキーな輸送律速型の構造のフロックが形成される。画像によって検知されるサイズに成長したフロックのみカウントしているため、初期に粒子数は増加したように見えるが、実際の粒子数は、フロックの衝突合一により、試験開始直後から指数関数的に減少していくと考えられる。さらにせん断速度を与え続けると、フロック同士の衝突合一が進みさらに大きなフロックへと成長する。フロック同士の結合強度が一定であれば、フロック



(a) Before coagulation. Kaolinite particles are dispersed.
 (b) Immediately after the initiation of coagulation.
 (c) Appearance of flocs reaching maximum diameter.
 (d) Densification by incorporating small flocs into large flocs.

Fig. 5 Schematic image of kaolinite flocs growing in a constant shear flow.

クを破壊しようとする力は近似的にフロックの表面積に比例するため、流体から受けるせん断速度が一定である場合、フロックはある大きさ以上に成長することはできない。したがって、フロックの大きさは(c)に点線で示したような大きさで限界値をとる。この値を超えてフロックが成長しようとしても、衝突し合ったフロックは大きな構造を保つことはできず、そのまますり抜けたり、小片に破壊されたりする。この小片は周囲の粒子や小フロックとともに、限界径を保っているフロックの多孔質構造の骨格に取り込まれる。このようにしてバルキーなフロックは、次第に密度の高い構造のフロックへ変化していく(d)。

このようにせん断速度に耐えうるフロック径は、フロックの構造を破壊する力と構造を維持する力のバランスでほぼ決まっており、その上限値に収束する形で、比較的高密度のフロック群が形成される。この時、フロック径はせん断速度によって定まる粒径範囲に維持され、破壊によって生じた微小クラスターがフロック構造に取り込まれることから粒子数は減少する。このように、粒径と粒子数の変化によって、フロックの構造変化を捉えることができる。

4.2 攪拌強度の評価

Campら^{13,14)}によりフロック形成に必要な初期の急速攪拌を定める指標として、攪拌強度G値と滞留時間Tを積算したGT値が用いられている。本試験における攪拌強度G値は $57.8 \text{ (s}^{-1}\text{)}$ であり、この値にフロック径が最大になるのに要した時間80秒を掛けると初期凝集に必要なGT値は 4624 (-) と求まる。またそれに引き続く成長と破壊、再配列が収束するまでに要した時間300秒を掛けるとそのGT値は 17341 (-) となる。ジャーテストなど通常の凝集試験は総て乱流状態であり、厳密な意味で水理学的条件を一定にすることは不可能であるが、本研究で得られたこの値は、カオリナイトとPACIによる凝集に限定されるものの、ジャーテストでの試験におけるGT値に意味を与える可能性を持つ。

4.3 輝度平均の経時変化

Fig. 6に、ROIに存在するフロックの輝度平均の最大値と最小値の経時変化を示す。輝度平均はフロック粒子ごとに算出し、ROIに存在する全粒子のうち最大値、最小値を抽出した。画像解析時の二値化の閾値は、輝度値ヒストグラムの中央値にあたる 167 (-) としたため、最大値は 167 (-) で一定であった。輝度閾値は、粒子として検知する輝度の範囲を示しており、輝度閾値が大きいほど、粒径はより大きく、粒子数はより多く検知する傾向にある。今回の解析結果において特徴的であったのは、輝度平均の最小値が、時間が

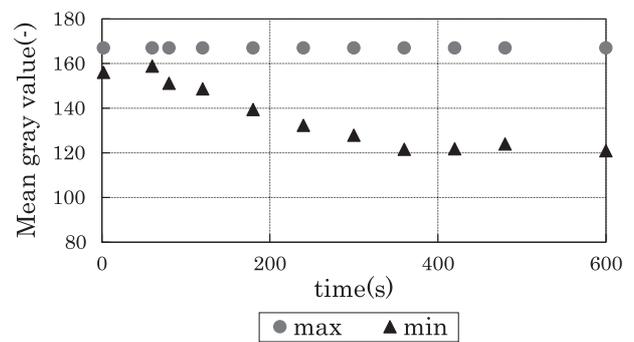


Fig. 6 Changes over time in the maximum and minimum values of mean luminance (as the mean value measured by image)

経過するにつれて減少していったことであった。カオリナイト粒子は光を透過しないため黒い影として写り、フロックを構成するゲル状の水酸化アルミニウム部分は透明であって画像に写らない。輝度平均が時間とともに減少したことは、フロックを構成するカオリナイト粒子が密に詰まり、時間とともにフロックが黒色に近づいていったためと考えられる。初期凝集段階の80秒までは、輝度平均の最小値は 160 (-) 付近にあり、カオリナイト粒子が疎に存在するバルキーな、撮影画像では灰色のフロックであったことが分かる。成長と破壊、再配列が生じていたと考えられる80~300秒までは、一定の速度で輝度平均が減少していた。フロックの代表径での評価では、この間の粒径はほぼ維持されていたが、フロックの構造は変化し、周囲のフロックを取り込みながら密に詰まっていたことの裏付けとなる。300秒以降は、輝度平均の変化は小さく、フロックは高密度状態を保ったまま安定していた。せん断速度によるフロックの高密度化は、初期凝集が終了した段階で急速に進むものの収束点があり、収束に達した後せん断速度を与え続けても、粒径と密度を維持していた。これらの結果から、本凝集条件において、300秒までに初期凝集や成長と破壊、再配列が生じ、以降は平衡状態にあってフロック構造も安定していたと言える。

4.4 対数正規確率紙による評価

Fig. 4 (a), Fig. 4 (b) に示した粒径分布について、統計的な検討を加える。Fig. 7 (a), Fig. 7 (b) に、粒径分布を対数正規確率紙にプロットした^{10,15)}。Fig. 7 (a) は、フロックの代表径を個数基準で算出した図であり、試験開始480秒については傾きが異なるものの、2秒から60秒までのデータに対し、ほぼ同じ傾きの直線となっている。ほぼ直線であることから、フロックの粒径分布は対数正規分布で近似することができる。さらに、経過時間に対して同じ傾きで推移していることから、粒径の測定データを平均値等の母集団の代表値で正規化した時に同じ関数形を示すことを表している。つまり、母集団の平均値などの代表値を

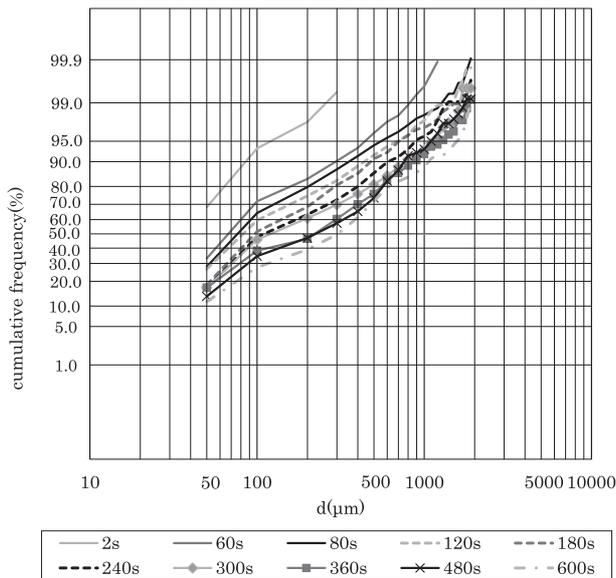


Fig. 7 (a) Relationship between standard deviation and particle size (number basis, logarithmic axis)

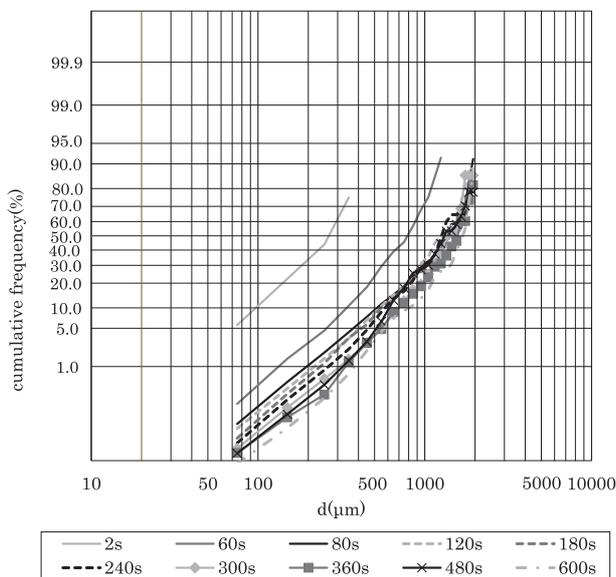


Fig. 7 (b) Relationship between standard deviation and particle size (volume basis, logarithmic axis)

使って、粒径分布の変化を数式化できる可能性が示唆された。90% 粒径である D_{90} が時間とともに増加していくことから、流れ場に対する代表径を検知し、対数正規分布に近似して粒径分布を得ることができる。また直線の右端が垂直に立っていることは、フロック径が上限値まで成長したことを表している。同様に、Fig. 7 (b) に、フロックの代表径を体積基準で算出したデータを示す。体積基準の場合も、初期には直線性を示すことから、体積基準で整理した場合であっても、フロックの粒径分布の対数正規分布での近似は、ほぼ妥当と判断した。試験開始 80 秒以降は直線の右端が Fig. 7 (a) に比べ、より顕著に垂直に立って重なっている。対数正規分布で近似した時に、最大径付近で直線から外れる点が上限に達していることが重要であり、

この部分がフロックの成長に限界があることを示している。したがって、フロック数で累積するより、フロックの体積で累積する方が、一定の攪拌強度に対し、対応するフロックの最大の大きさを明瞭に捉えることができる。

5. 結 論

一様なせん断流れ場におけるフロック構造の変化過程を画像撮影と画像解析によって把握することを目的に、横置き外筒回転型のクエットデバイスにおいて、カオリナイト 100 mg/L, PACl 50 mg/L, pH 7.0 の試験水に対し、せん断速度 0.029 N/m^2 を与える凝集試験を行った。結論を以下にまとめる。

- ・フロック径と粒子数の推移から、フロックの出現、急激な成長、フロック径の限界値を超える成長、細片の取り込みと再配列の繰り返しを経た高密度化といった一連の凝集現象を計測でき、本試験系の有効性を確認した。
- ・凝集状態が変化する GT 値は、初期凝集では 4624 (-)、成長の限界と再配列の収束まででは 17341 (-) であり、この値はジャーテスト等の攪拌強度設定の根拠となる可能性がある。
- ・80~300 秒におけるフロック径の維持と粒子数の減少、輝度平均の減少から、フロックの内部に微細フロックが取り込まれ、高密度化していく現象が確認された。
- ・再配列に伴う高密度化には限界があり、比較的大きなフロック径を維持したまま、フロック構造が変化しない安定状態へ移行することが確認された。
- ・フロックの粒径分布は、個数基準、体積基準で整理したいずれの場合でも対数正規分布で近似でき、フロックの成長限界が確認された。この現象は、体積基準の方がより明瞭な形で捉えられた。

6. 今後の展望

高密度なフロックは、沈降速度が高く固液分離装置の小型化や簡素化に寄与する可能性がある。凝集剤注入率や pH といった薬注条件の調整ではなく、せん断速度を与える時間によってフロックの構造が高密度化する現象は、既存の凝集方法を大きく変えずに固液分離効率を向上させる可能性を秘めており非常に重要である。せん断速度がフロック構造の変化に影響していることは明らかであり、せん断速度に着眼した研究を展開していくことが重要と考える。

参考文献

- 1) N. Tambo and Y. Watanabe: Physical Characteristics of Floccs—I. The Floc Density Function and Aluminum Floc, *Water Research*, Vol. 13, pp. 409-419 (1979)
- 2) 丹保憲仁, 渡辺義公: アルミニウム・フロクの密度に関する研究, *日本水道協会誌*, pp. 2-10 (1967)
- 3) 丹保憲仁, 穂積 準: フロク形成におよぼす凝集条件について, *衛生工学*, 北海道大学衛生工学教室, 16, pp. 37-47 (1968)
- 4) 楠田哲也: フロクの形成条件がその性質におよぼす影響, *土木学会論文報告集*, 第 217 号, pp. 33-39 (1973)
- 5) K. Higashitani and T. Kubota: Pelleting Flocculation of Colloidal Latex Particles, *Powder Technology*, 51, pp. 61-69 (1987)
- 6) 足立泰久, 田中良和, 大井節男: アルミニウム塩によって凝集したカオリナイトフロクの構造に関する研究, *農業土木学会論文集*, No. 203, pp. 45-51 (1999)
- 7) N. Chigier: Optical Imaging of Sprays, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 17, Issue 3, pp. 211-262 (1991)
- 8) N. Chigier: Drop Size and Velocity Instrumentation, *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 9, pp. 155-177 (1983)
- 9) C. S. Ow and R. I. Crane: A Simple Off-Line Automatic Image Analysis System with Application to Drop Sizing in Two-Phase Flows, Vol. 2, Issue 1, pp. 47-53 (1980)
- 10) Y. Adachi, C. Di, F. Xiao and M. Kobayashi: Size, orientation, and strength of Na-montmorillonite floccs flowing in a laminar shear flow, *Colloid and Polymer Science*, 297, pp. 979-987 (2019)
- 11) T. Ferreira and W. Rasband: ImageJ User Guide, IJ 1.46r: <https://imagej.nih.gov/ij/docs/guide/user-guide.pdf> (2012)
- 12) 日本産業標準調査会: 粒子径解析 —— 画像解析法 —— 第 1 部: 静的画像解析法, *Z 8827-1*, pp. 2-12 (2018)
- 13) Camp, T. R. and Stein, P. C.: Velocity Gradients and Internal Work in Fluid Motion, *Journal of Boston Society of Civil Engineering*, 30, pp. 219-237 (1943)
- 14) Camp, T. R.: Flocculation and Flocculation Basins, *American Society of Civil Engineers*, Vol. 79, No. 283, pp. 283-1-18 (1953)
- 15) 鹿沼陽次: Excel による確率紙の書き方 パソコンによるデータ解析実践講座 (2), *REAJ 誌*, Vol. 19, No. 3, pp. 211-224 (1997)

Structural Change of Poly-aluminum Chloride and Kaolinite Floc in Constant Shear Flow by the Couette Device

Mii Fukuda (Hayami)^{1)†}, Takashi Menju¹⁾ Takeshi Ide¹⁾

Tatsuro Uchida²⁾, Susumu Sakurai³⁾ and Yasuhisa Adachi³⁾

¹⁾ Infrastructure Systems Research and Development Center, Toshiba Infrastructure Systems & Solutions Corporation

²⁾ Energy Systems Research and Development Center, Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation

³⁾ Graduate School of Life and Environment science, University of Tsukuba

† Correspondence should be addressed to Mii Fukuda (Hayami) :

Infrastructure Systems Research and Development Center, Toshiba Infrastructure Systems & Solutions Corporation

E-mail : mii.fukuda@toshiba.co.jp

Abstract

A floc structure with excellent solid-liquid separation is important for the design of water treatment equipment. Over the years, various combinations of agitation and coagulant dosing have been investigated. However, since mechanical agitators such as impeller agitators create complex turbulent conditions, there are few reports of phenomena in which the shear rate generated from the flow field affects coagulation and breakage. Therefore, in this study, we discuss effects of simple laminar shear flow on floc structure using the Couette device. This device has a concentric cylindrical structure with a rotating outer cylinder, and generates a uniform laminar shear flow in the gap between the outer cylinder and the inner cylinder. Using this device, we photographed changes in floc structure due to shear rate. As a result, the applicability of the device was confirmed, and a gradual increase in the density of bulky floccs formed in the flow field was observed.

Key words : coagulation, floc structure, poly-aluminum chloride, shear flow, image analysis