

# 膜・粒子への溶質吸着を考慮した 精密濾過モデルの構築

○辰巳 怜<sup>1</sup>, 安藤 努<sup>2</sup>, 小池 修<sup>3</sup>,  
辻 佳子<sup>1,3</sup>, 山口由岐夫<sup>3</sup>

<sup>1</sup>東京大学 環境安全研究センター

<sup>2</sup>日本大学 生産工学部 機械工学科

<sup>3</sup>東京大学 大学院工学系研究科 化学システム工学専攻

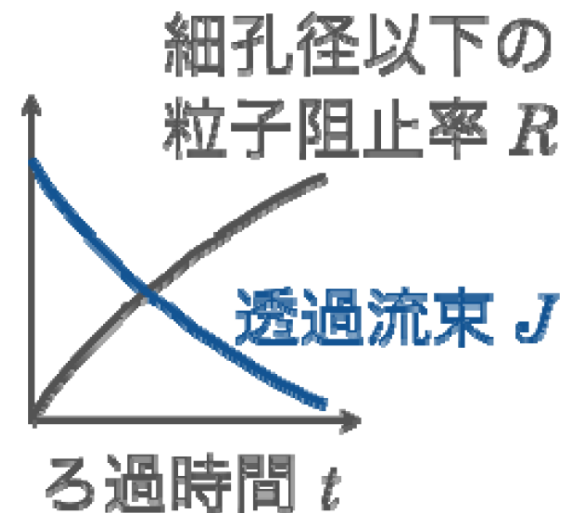
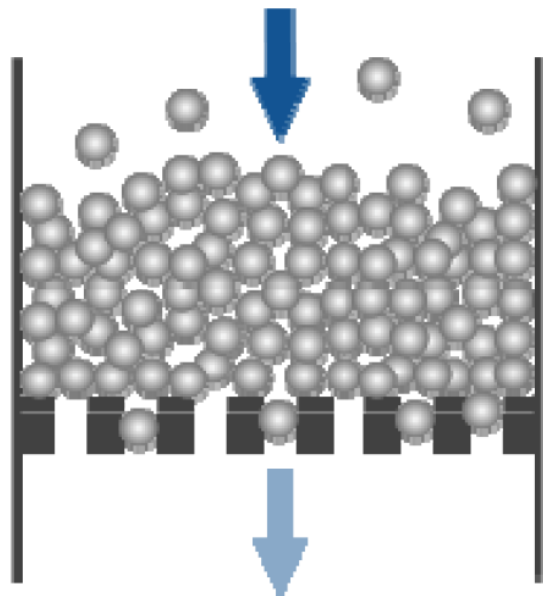
# デッドエンド精密濾過の課題

粒子の堆積による閉塞 (fouling)

濾過工程の最適化のための機構解明

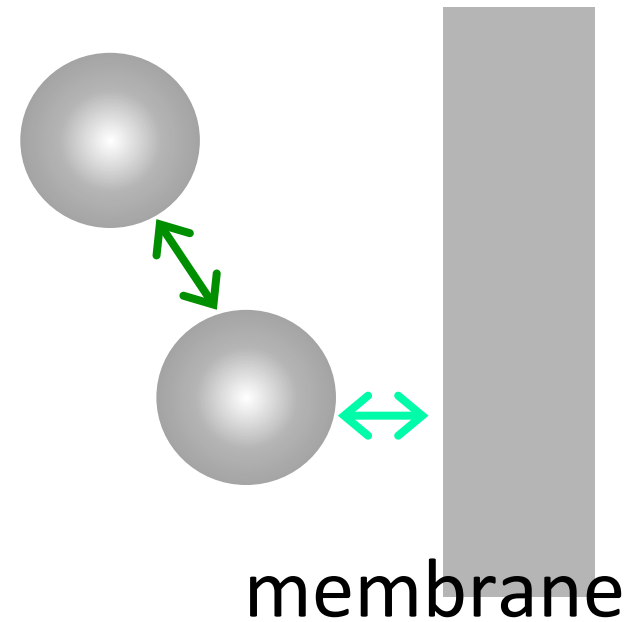
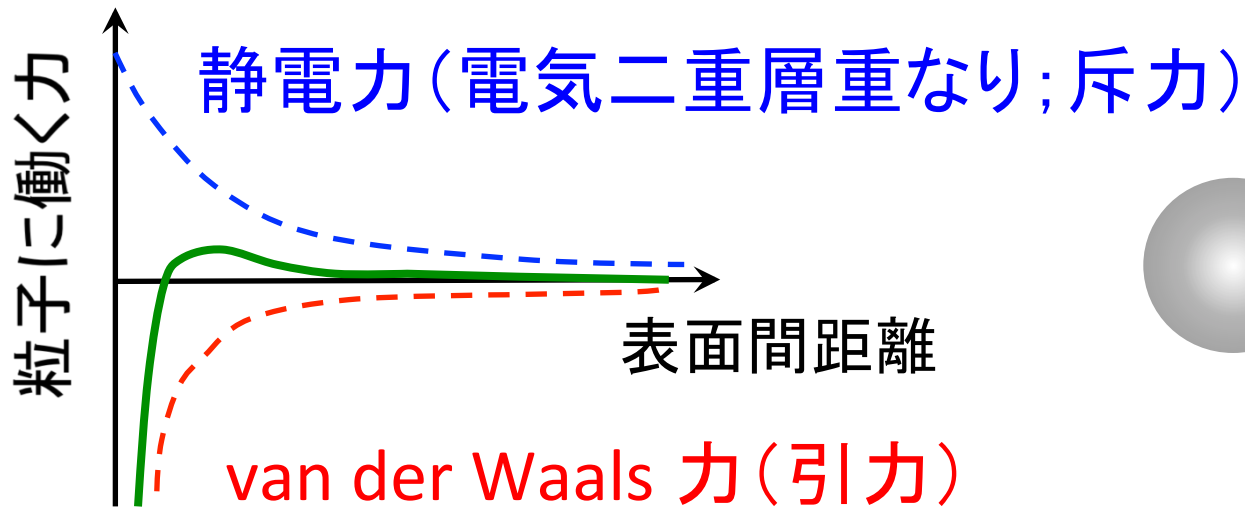
- ・ 運転条件
- ・ 膜
- ・ 粒子

粒子-膜/粒子間相互作用



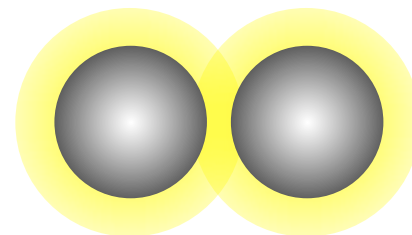
# 粒子-膜/粒子間相互作用

## DLVO理論



## 吸着性溶質(高分子)添加系

・吸着層重なりによる力



# 目的

メソスケールモデルによる解析

粒子運動 + 流動場（流体力学；移動境界条件）

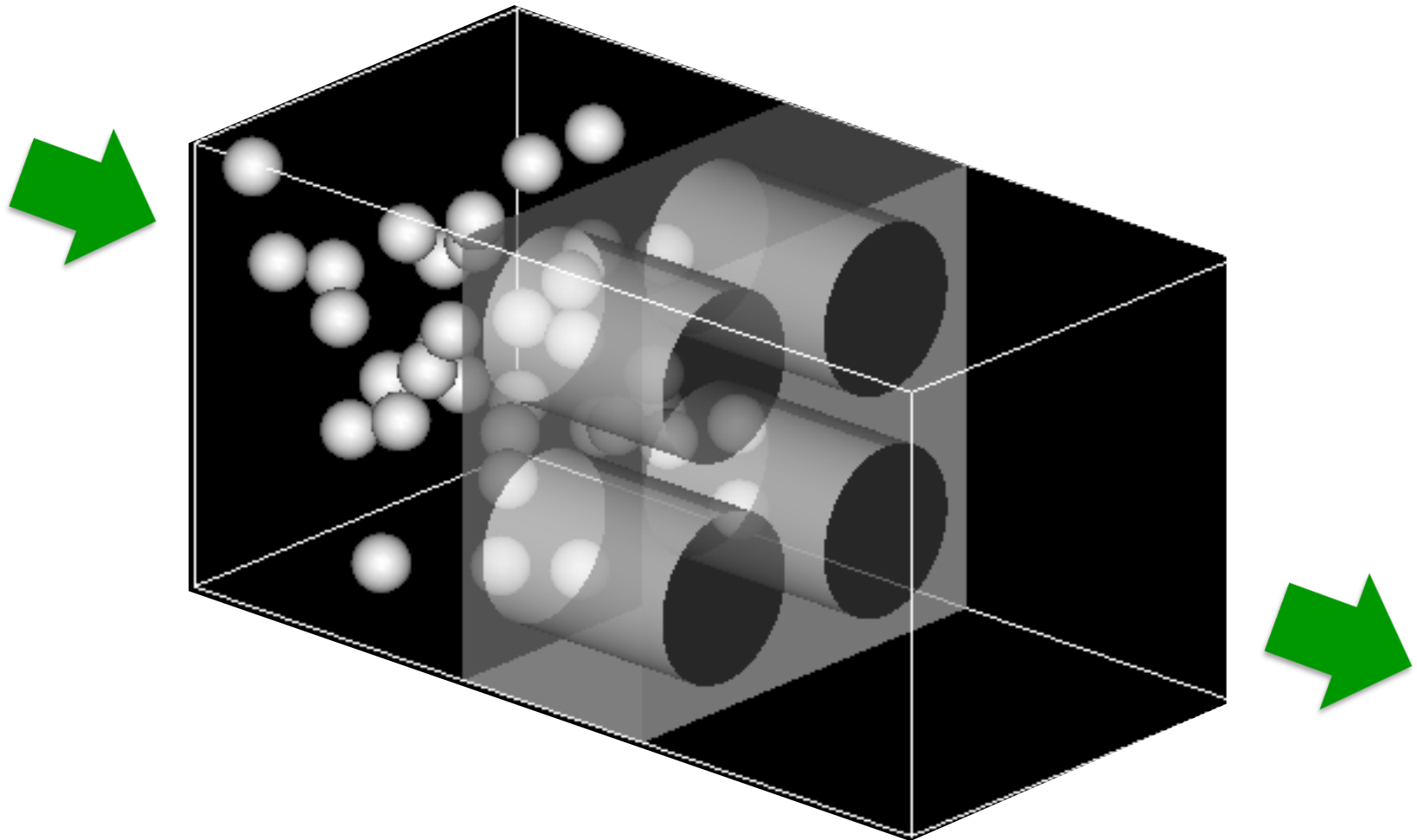
[先行研究：以下の事柄について]

- ・細孔径-粒径比と濾過性能の関係
- ・実験データとの相関

T. Ando et al., *J. Membr. Sci.* **392-393**, 48 (2012).

吸着性溶質を考慮したモデルの開発

# 先行研究

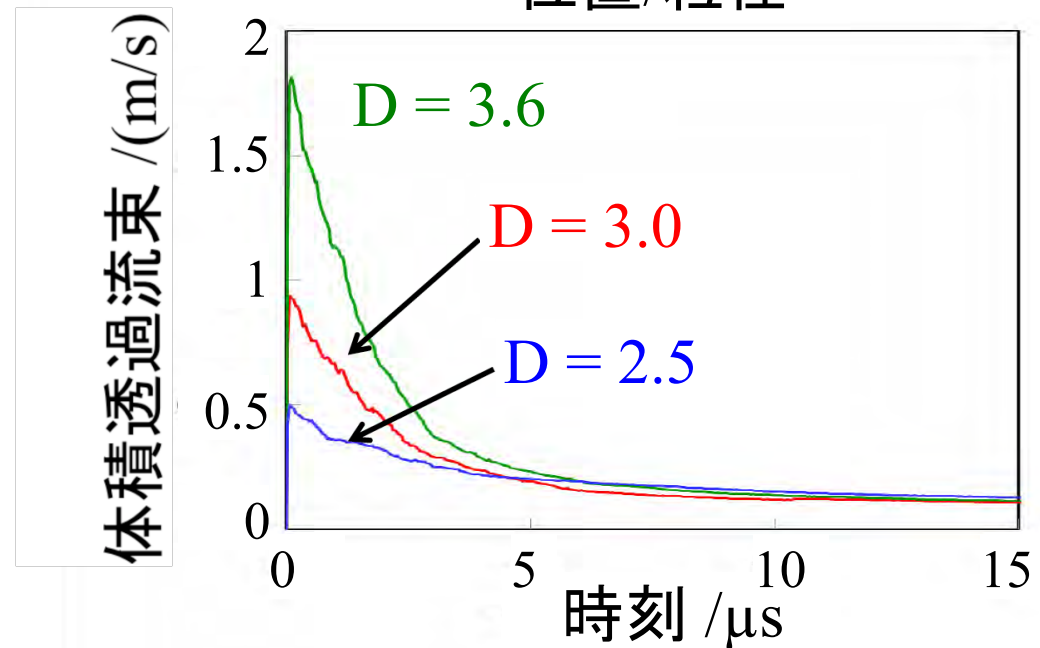
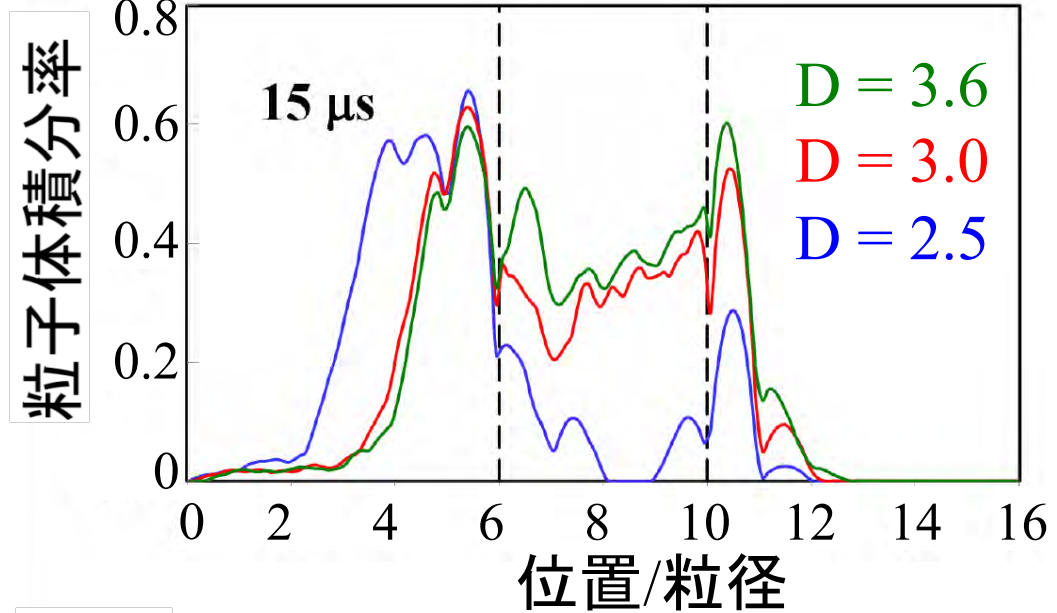
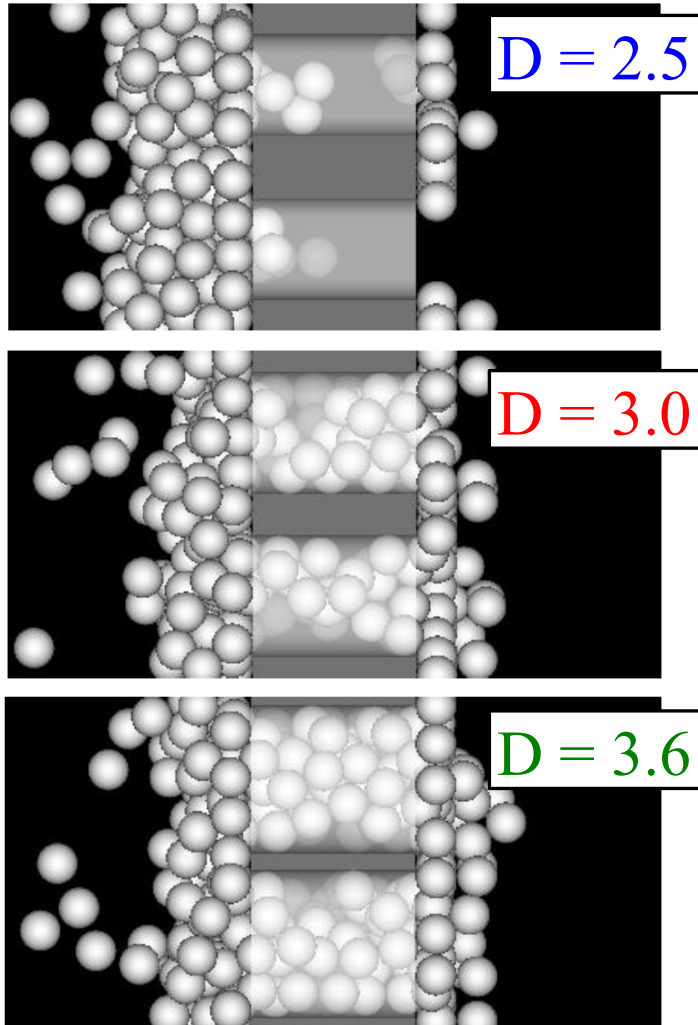


デッドエンド濾過 4細孔モデル

T. Ando et al., *J. Membr. Sci.* 392-393, 48 (2012).

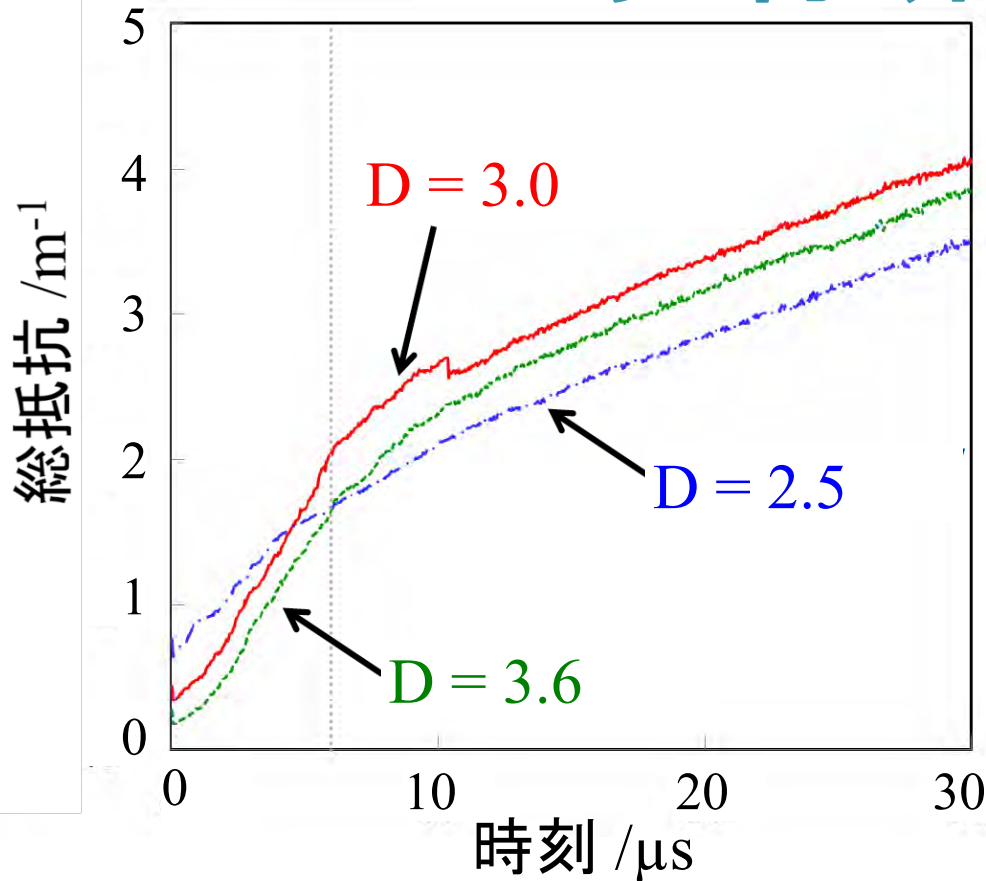
# 先行研究

$D = \text{細孔径} / \text{粒径}$



T. Ando et al., *J. Membr. Sci.*  
**392-393**, 48 (2012).

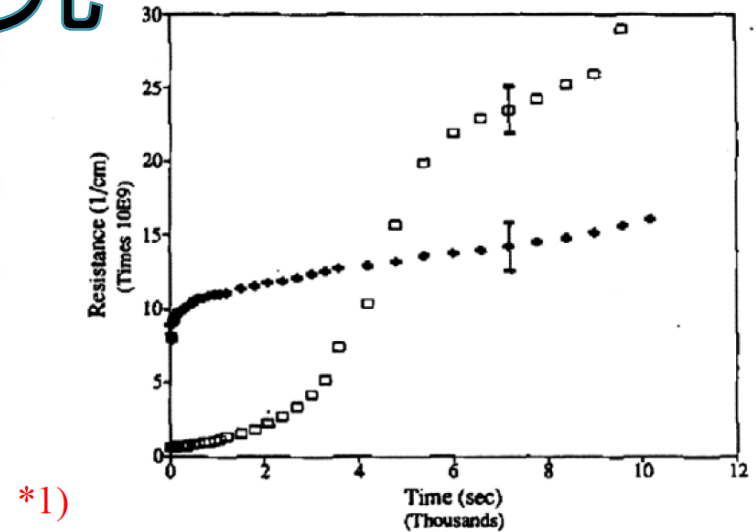
# 先行研究



T. Ando et al., *J. Membr. Sci.* **392-393**, 48 (2012).

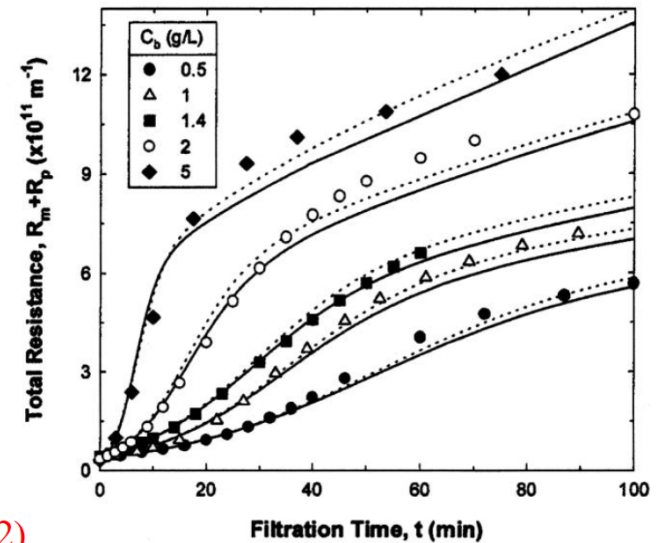
1) E.M. Tracy, R.H. Davis, *J. Colloids Interface Sci.* **167**, 104 (1994).

2) C.C. Ho, A.L. Zydney, *J. Colloids Interface Sci.* **232**, 389 (2000).



\*1)

FIG. 4. Total resistance as a function of time for membranes fouled with 0.1 g/liter BSA at 10 psig; ( $\square$ ) polycarbonate membranes with 0.2  $\mu\text{m}$  pores; (+) polycarbonate membranes with 0.05  $\mu\text{m}$  pores.



\*2)

FIG. 3. Total resistance as a function of time for BSA filtration through the PCTE membranes. Solid and dotted curves are model calculations using the complete model (Eq. [16]) and the approximate analytical solution (Eq. [17]).

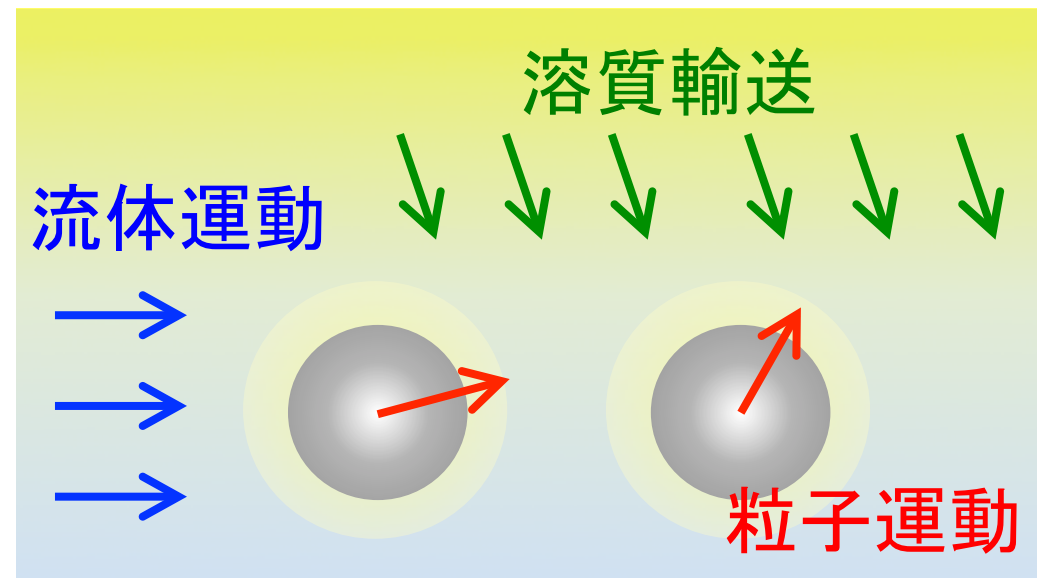
# モデル

## 粒子, 流体, 溶質 の運動/輸送方程式の連成

- ・粒子: Newton/Euler の運動方程式
- ・流体: Navier-Stokes 方程式
- ・溶質: 移流拡散方程式

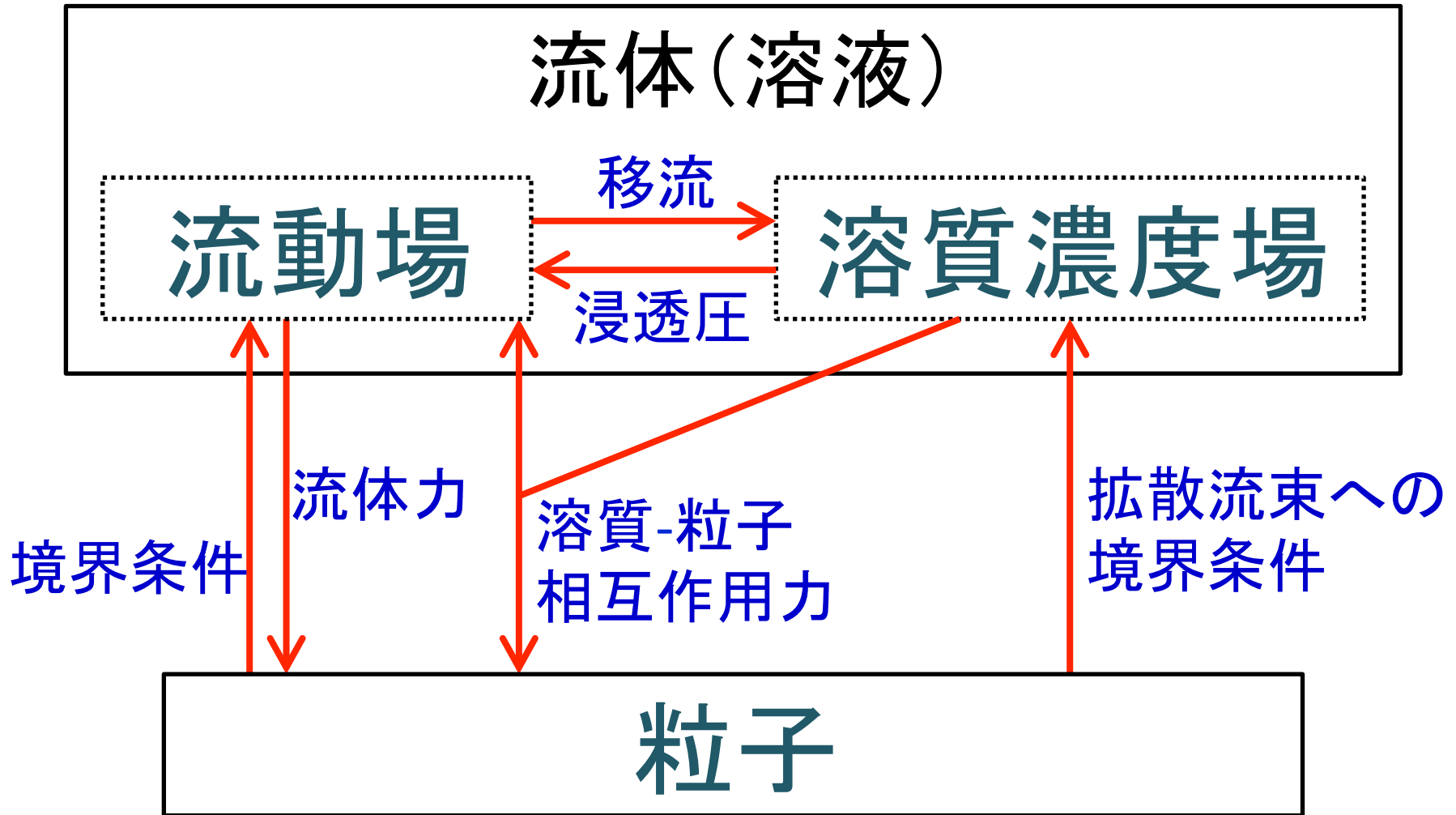
### [新しい要素]

- ・溶質の物理吸着
- ・溶質の輸送





# 運動の連成



# 支配方程式

溶質濃度場

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (c\mathbf{v}) = -\nabla \cdot \mathbf{J}$$

拡散流束

物体表面での境界条件

非貫入性  
吸着性

流動場

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$$

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} \right) = -\nabla p + \eta \nabla^2 \mathbf{v} + \rho \Phi \mathbf{a} - c \nabla U_{\text{ad}} - \nabla \pi$$

物体速度を 物体表面-溶質  
強制する力 相互作用  
浸透圧

総運動量の保存

粒子

$$M_i \frac{d}{dt} \mathbf{V}_i = \mathbf{F}_i^H + \mathbf{F}_i^S$$

$$\mathbf{I}_i \cdot \frac{d}{dt} \boldsymbol{\Omega}_i = \mathbf{N}_i^H$$

流体力・トルク

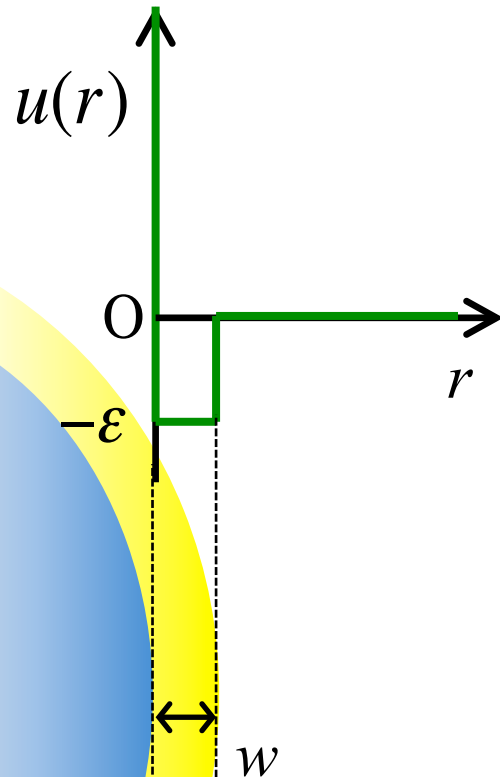
$$\mathbf{F}_i^H = -\int \rho \Phi \mathbf{a} \, dr \quad \mathbf{N}_i^H = -\int (\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \times \rho \Phi \mathbf{a} \, dr$$

粒子-溶質相互作用

$$\mathbf{F}_i^S = \int c \nabla U_{\text{ad}} \, dr$$

# 吸着のモデル化

物体表面-溶質相互作用：井戸型ポテンシャル



$$u(r) = \begin{cases} \infty & r < 0 & \text{剛体斥力} \\ -\epsilon & 0 \leq r < w & \text{引力} \\ 0 & r \geq w & \rightarrow \text{吸着層形成} \end{cases}$$

吸着エネルギー：  $\beta\epsilon = \epsilon / RT$

吸着層厚さ：  $w$

任意形状の物体に適用可能

# 支配方程式 (溶質濃度場)

溶質濃度場

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (c\mathbf{v}) = -\nabla \cdot \mathbf{J}$$

浸透圧  $\pi = RT(\Xi - 1)c^*$

拡散流束

$$\mathbf{J} = -D(1 - \Phi)\Xi \nabla c^*$$

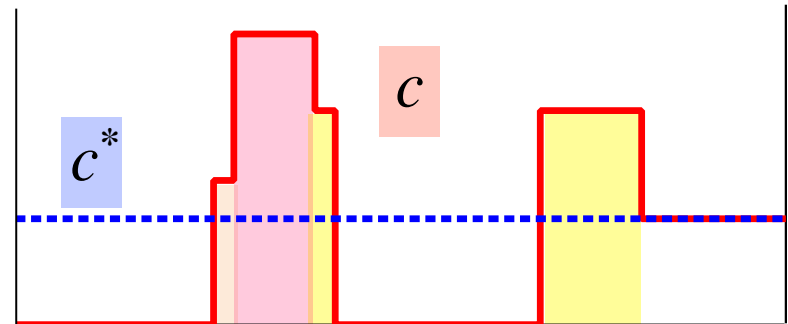
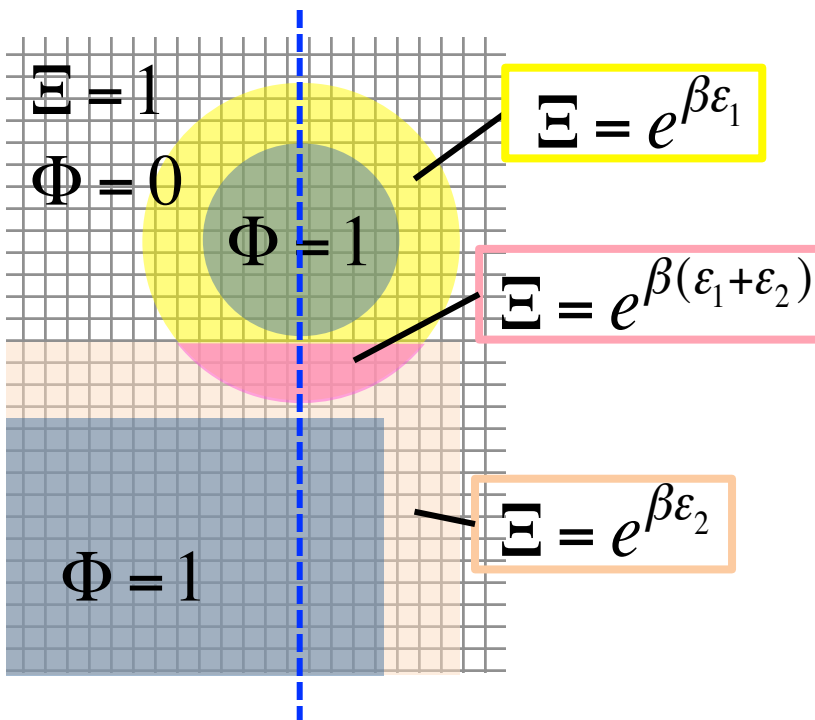
指示函数

$\Phi$  : 粒子領域

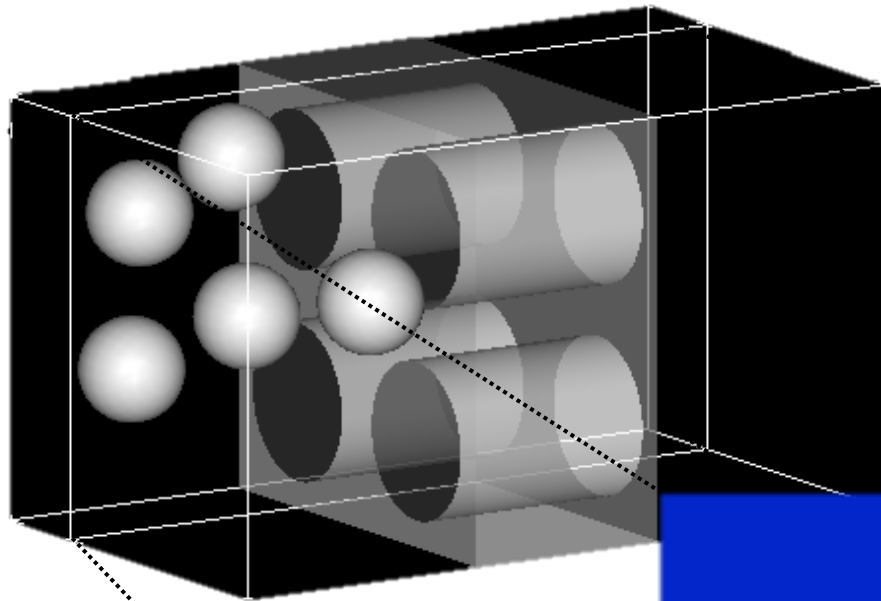
$\Xi = \exp[\beta \sum_i n_i \varepsilon_i]$  : 吸着領域

$n_i$  : 吸着層の重なり数

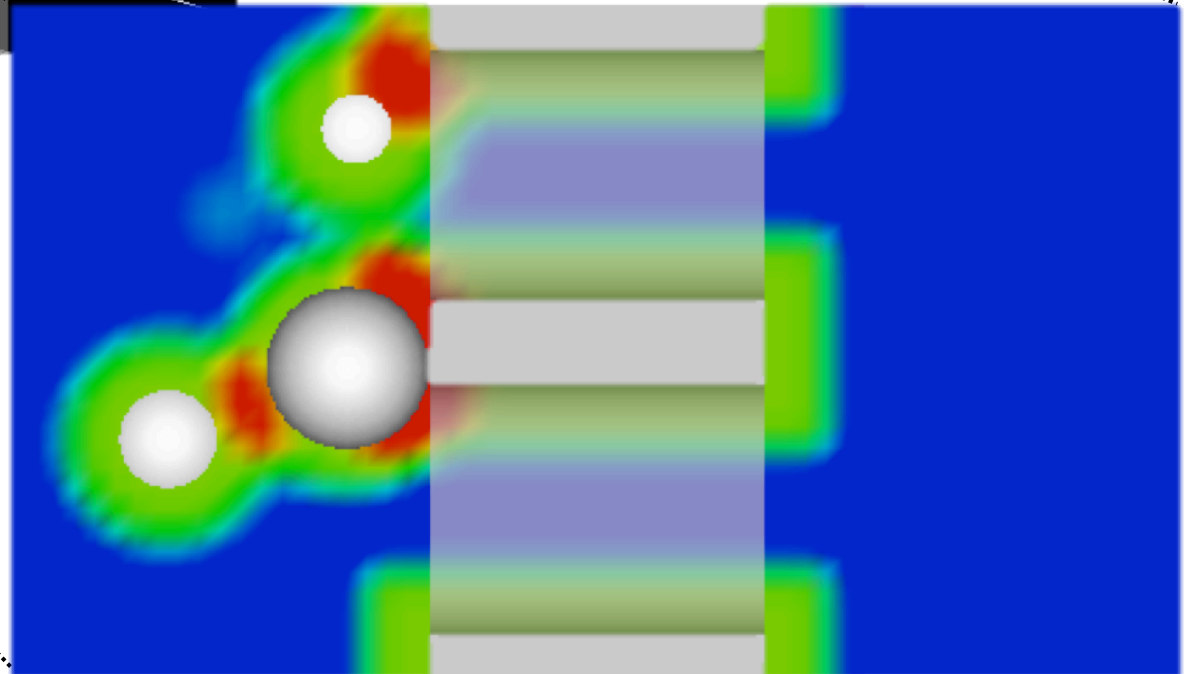
$c = (1 - \Phi)\Xi c^*$  仮想濃度場



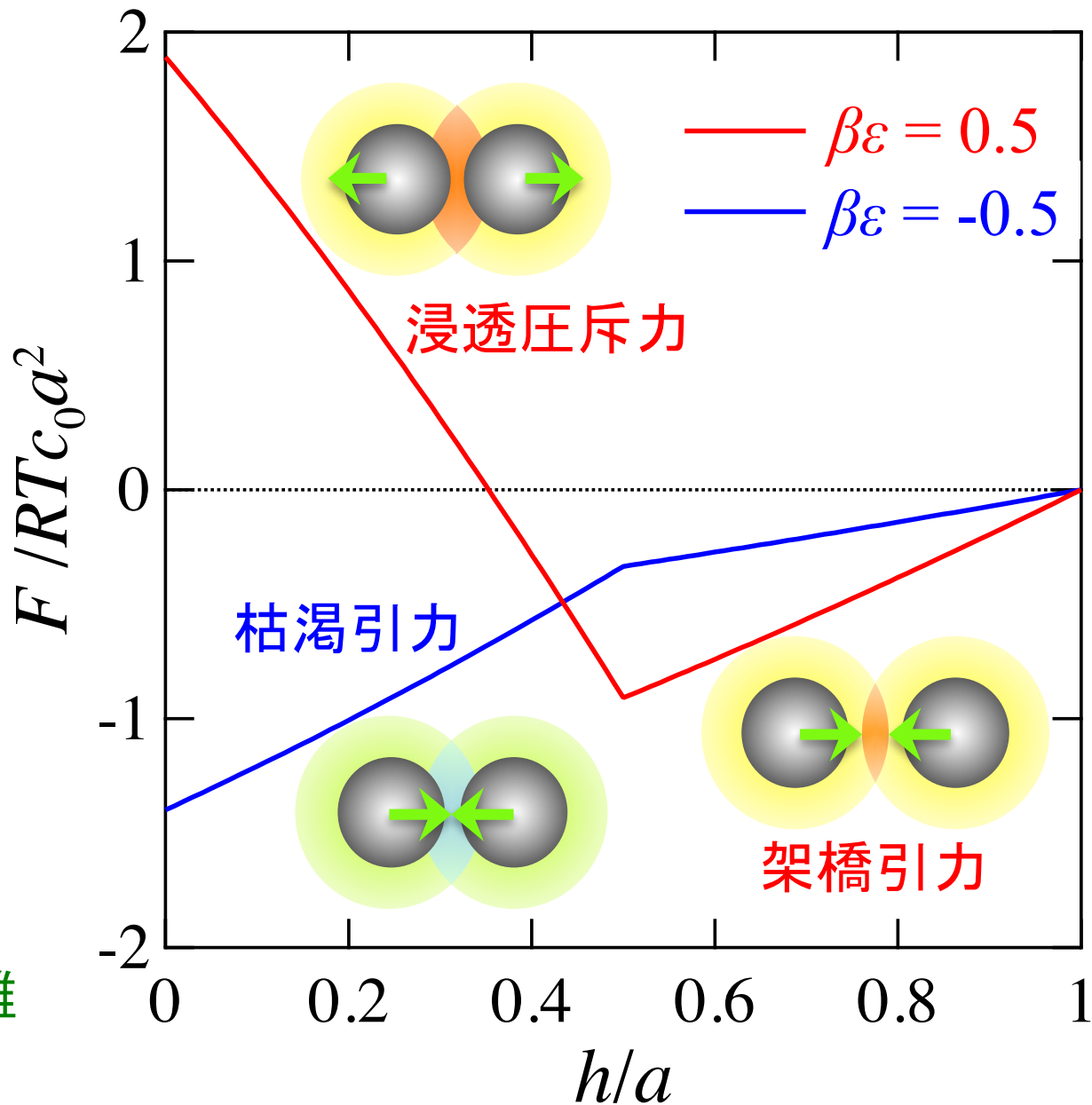
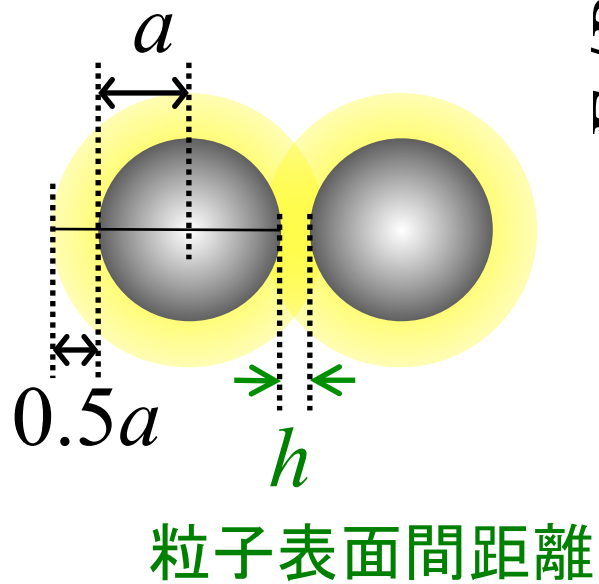
# 溶質濃度分布



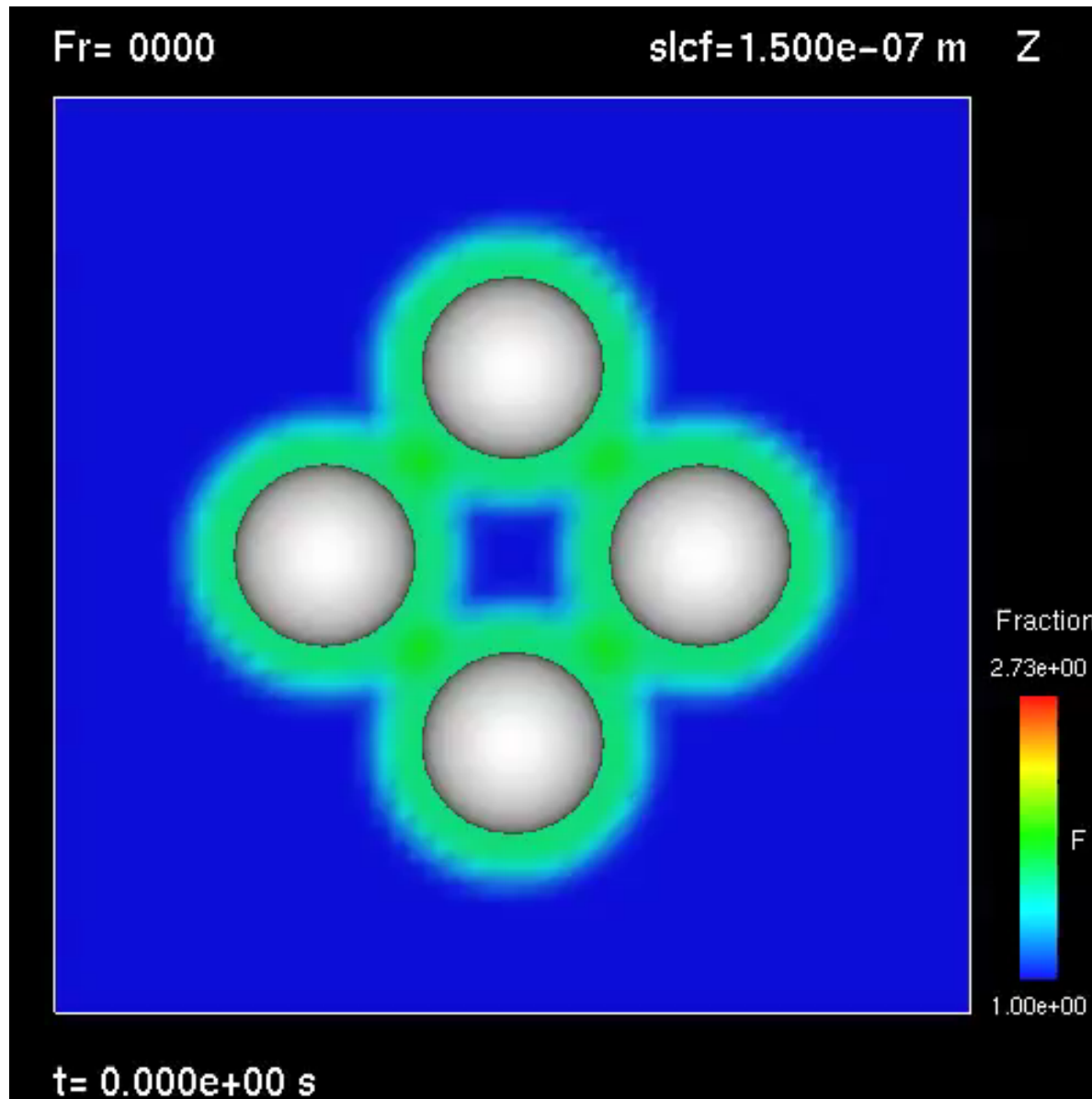
吸着層を形成  
(溶質濃度が高い領域)



# 吸着による粒子間力（解析解）

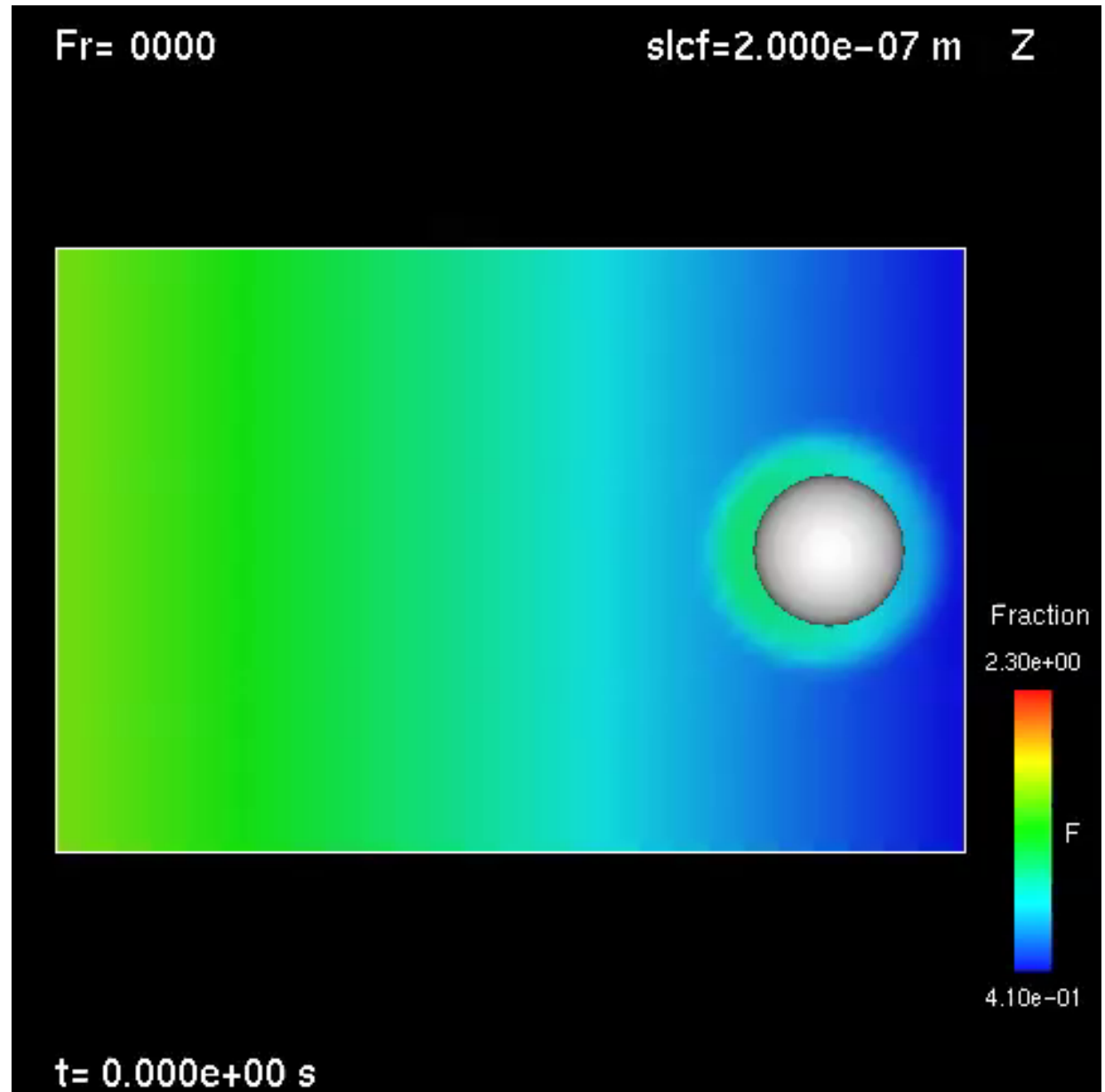


# 溶質吸着による粒子凝集



# 拡散泳動(一定濃度勾配)

不均一濃度場  
↓  
粒子運動





# 数值計算条件

深澤佑介(日大・安藤研)  
平成26年度 卒業研究

## 溶媒(水)

・温度 20 °C

## 粒子

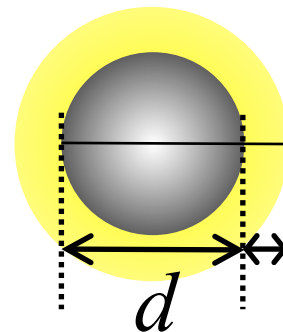
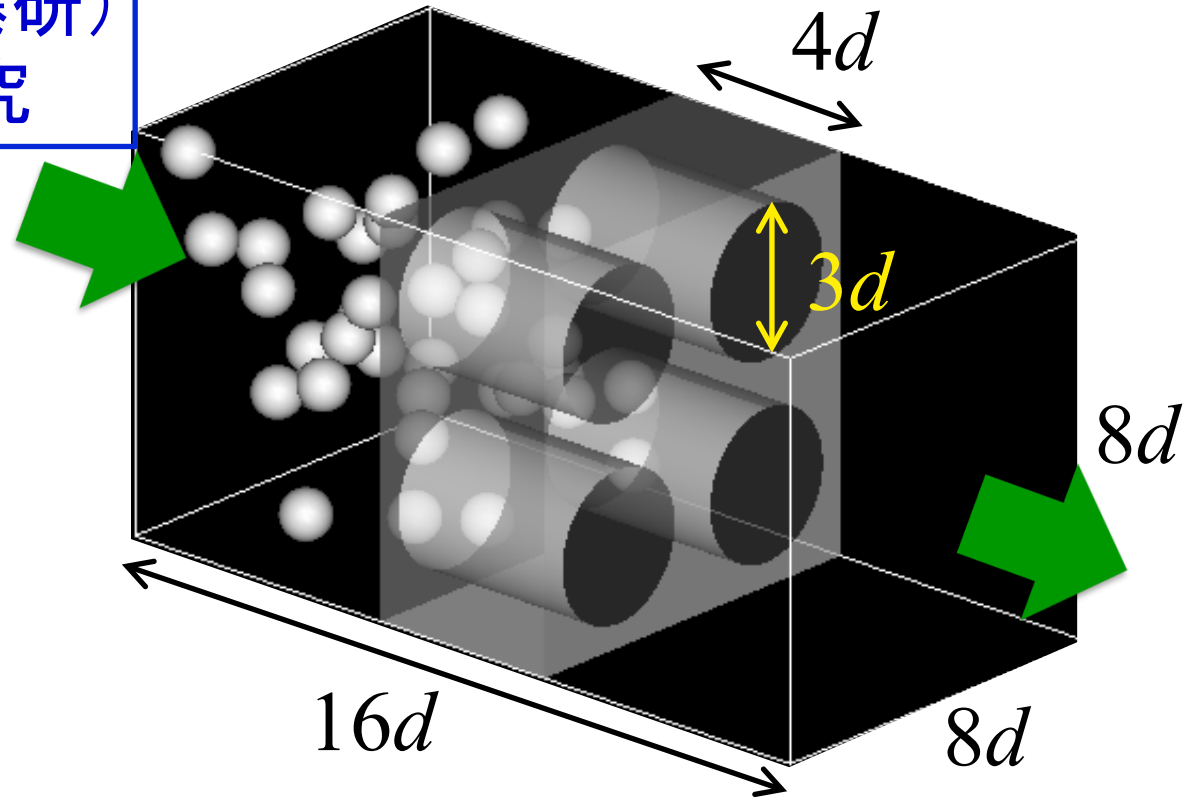
・粒径  $d = 100 \text{ nm}$   
 ・体積分率 5 vol.%  
 ・ $\zeta$ -電位 -50 mV  
 (粒子, 膜共通)

## 溶質

・バルク溶質濃度 0.01 mol/L

## 運転条件

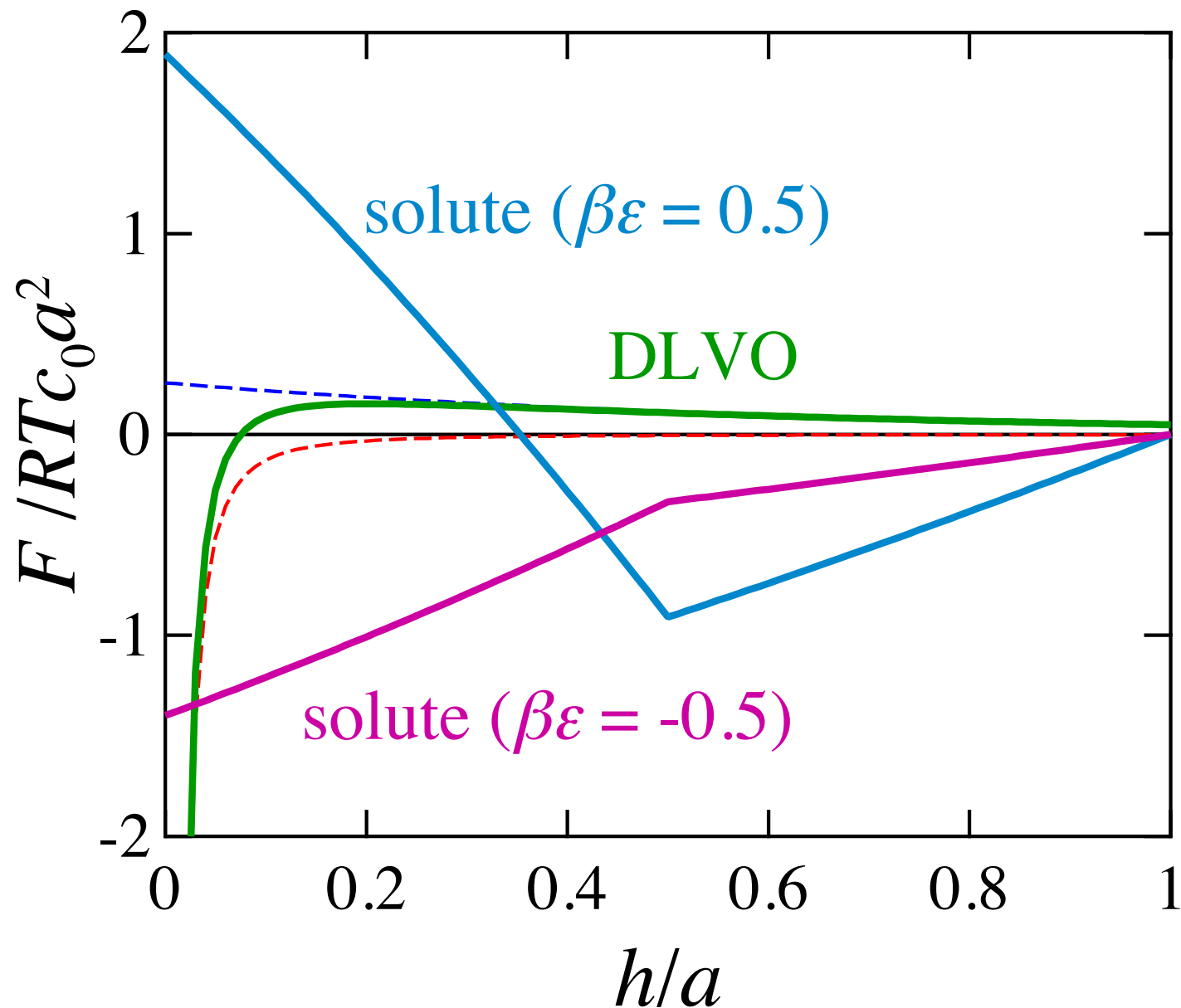
・圧力勾配 100 GPa/m



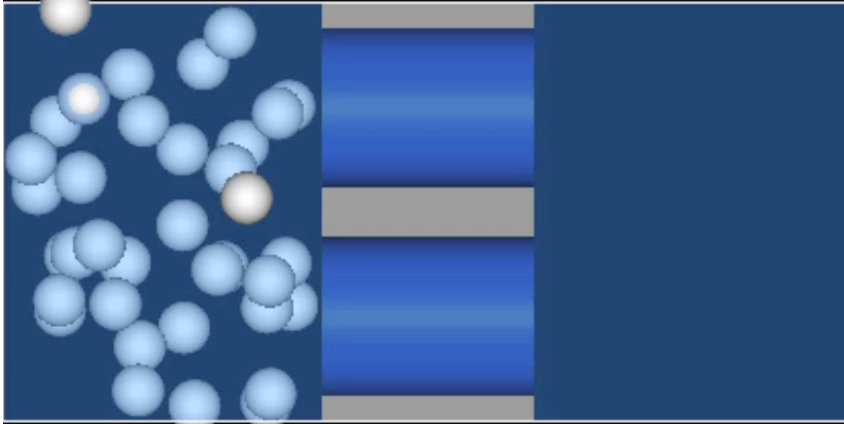
・吸着層  
 (粒子, 膜共通)

0.25d

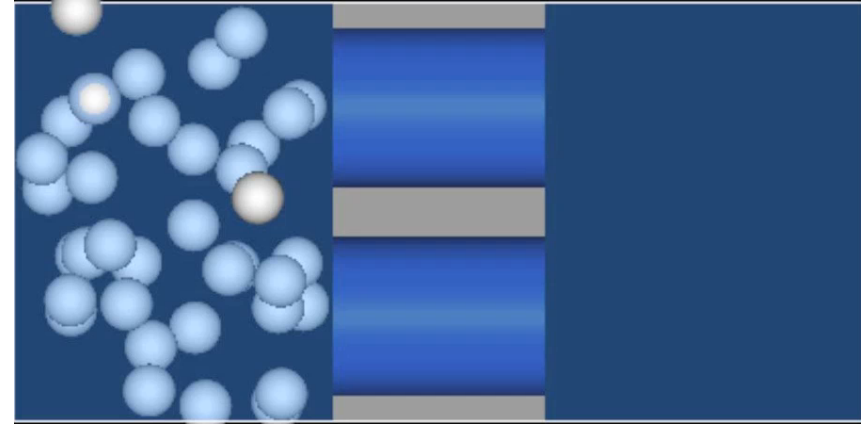
# 粒子間力



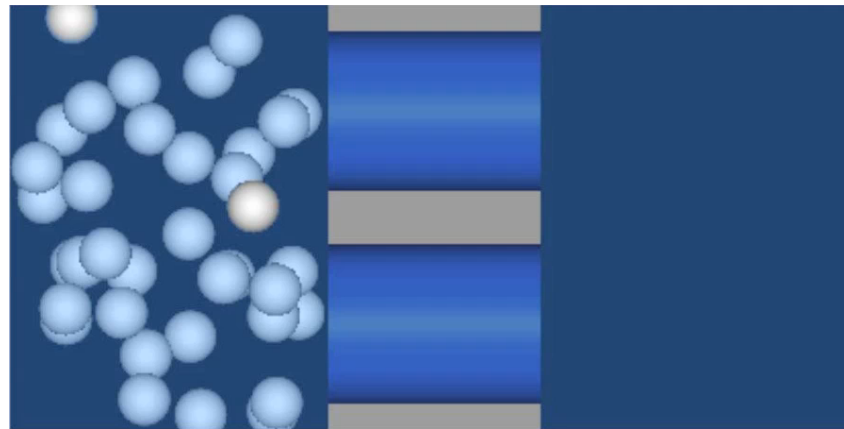
# 数值计算结果



$$\beta\varepsilon = 0.5$$



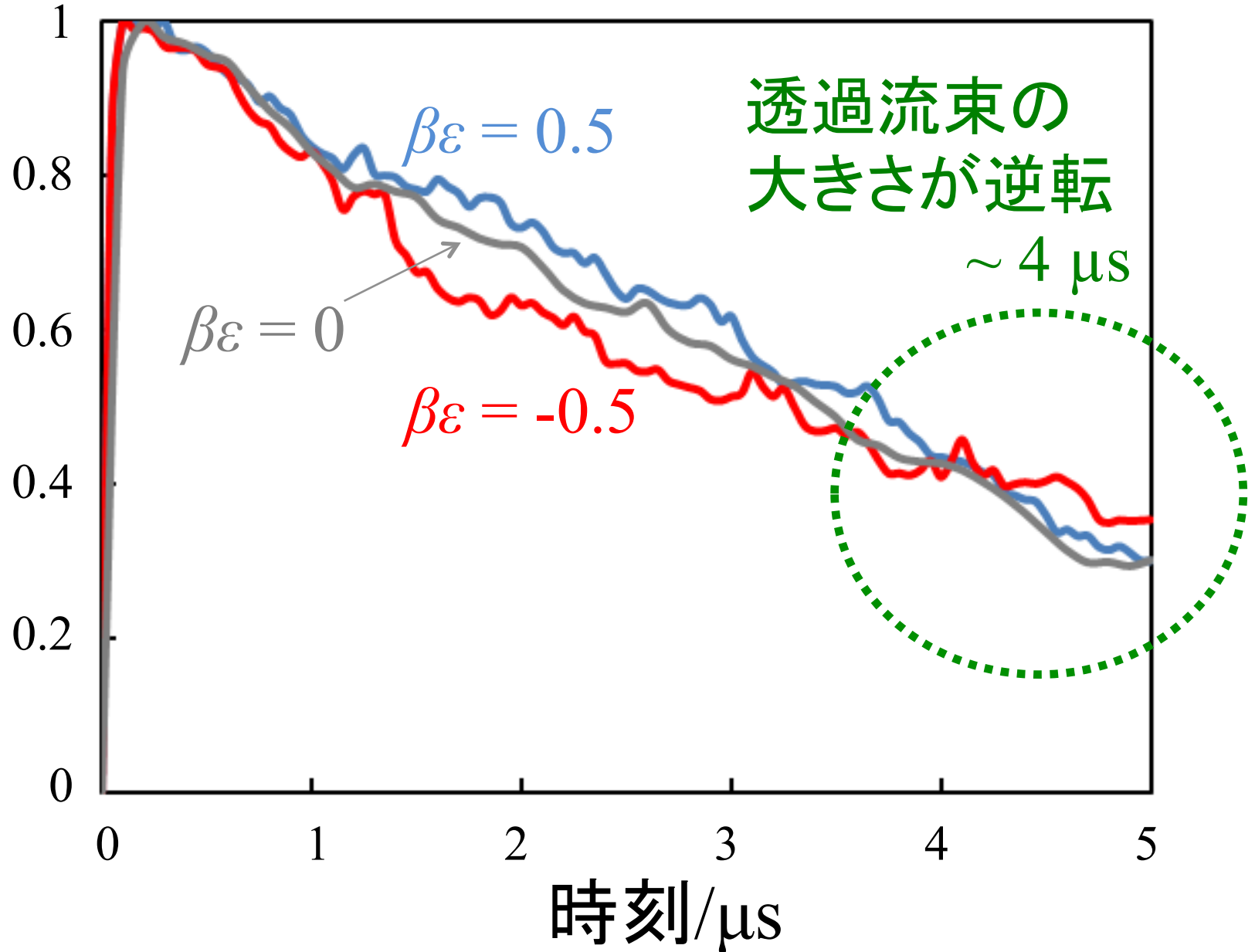
$$\beta\varepsilon = -0.5$$



$$\beta\varepsilon = 0$$

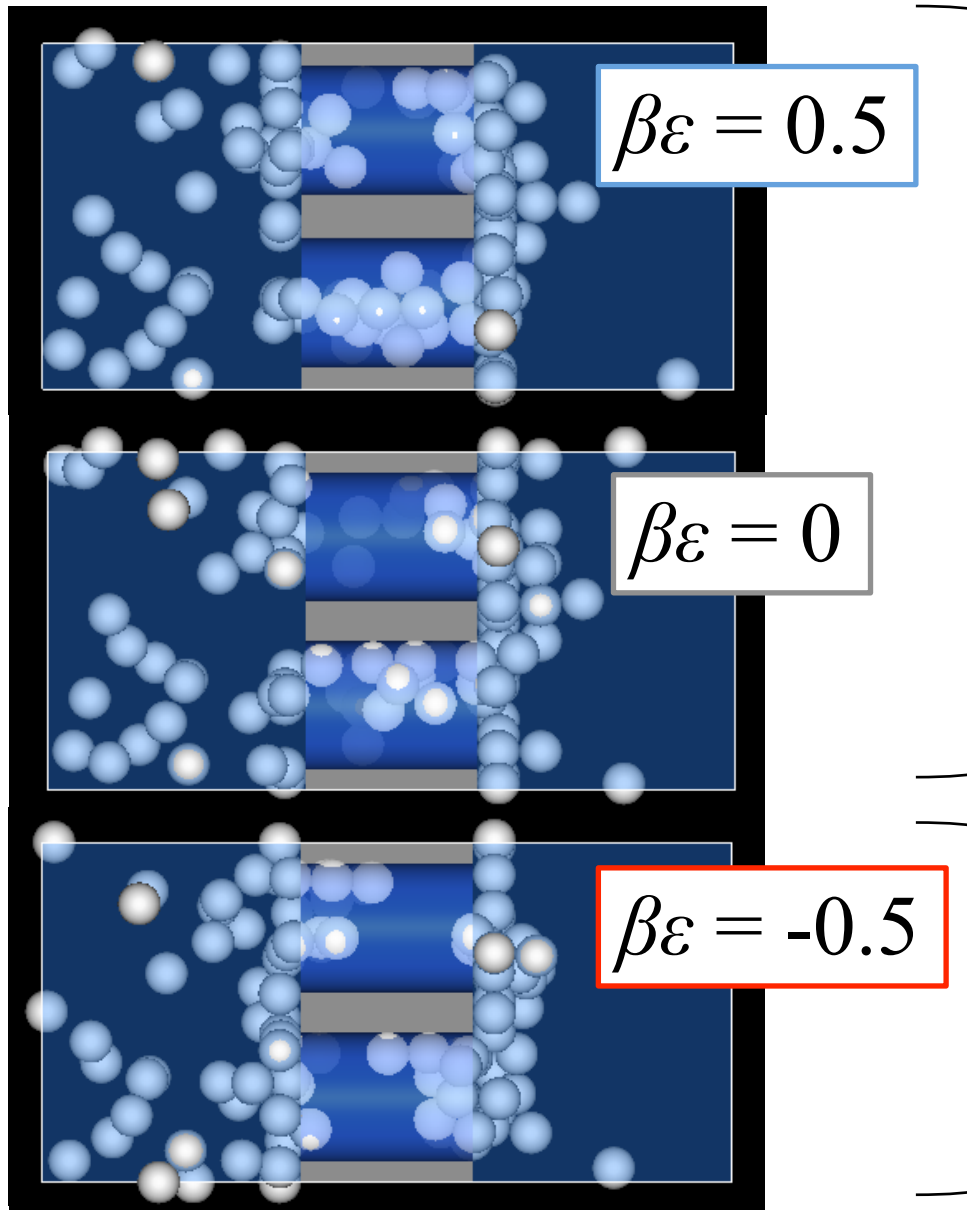
# 透過流束

正規化透過流束



# 粒子の堆積状況

$t = 4 \mu\text{s}$



- 後方で堆積  
→ 目詰まりの起点  
→ 流量の減少
- 前方で堆積  
→ 目詰まりを抑止  
→ 流量を維持  
(ケーク層の形成)

# 総括

- 膜/粒子への溶質吸着を考慮した精密濾過のメソスケールモデルの構築を行った

溶質の膜/粒子への物理吸着  
溶質の輸送(移流/拡散)

- 溶質吸着による粒子-膜/粒子間相互作用が粒子の堆積, 透過流束に影響を及ぼすことを示した

→ 吸着性溶質による濾過性能への影響の解析に有用