

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 8 日現在

機関番号：32403

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560903

研究課題名(和文) 粒子分散液流れシミュレーションによる精密ろ過プロセス性能推算法の確立

研究課題名(英文) Development of estimation method of microfiltration processing capability by simulation of particulate suspension flows

研究代表者

藤田 昌大 (Fujita, Masahiro)

城西大学・理学部・教授

研究者番号：40436530

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では粒子分散液流れの数値シミュレータを開発して、デッドエンドおよびクロスフロー精密ろ過プロセスに適用することによって、膜細孔径、開孔比、電解質濃度などのプロセス変数が膜の目詰まり(ファウリング)に及ぼす影響を調べた。その結果、ファウリングの形態、発生メカニズム、発生条件が定量的に明らかになり、透過流束や粒子阻止率などの膜ろ過プロセスの性能を推算する方法を示すことができた。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have developed a numerical simulator of particulate suspension flows. We have applied the simulator to dead-end and cross-flow microfiltration processes, so that we have investigated the effects of the process parameters, such as pore size, open pore ratio and electrolyte concentration, on membrane fouling. As a result, we have clarified configuration, mechanism and condition of the fouling, and obtained an estimation way of microfiltration processing capability, such as permeate flux and particle rejection ratio.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学 化工物性・移動操作・単位操作

キーワード：精密ろ過 ファウリング 膜細孔径 開孔比 透過流束 粒子阻止率 シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

水道浄水や排水処理等の水処理において、膜ろ過を用いた処理方法が注目を集めているが、水中に懸濁した分子や粒子によるファウリングが引き起こす膜性能の低下という問題を抱えている。したがって膜ろ過プロセスの最適化のためには、ファウリングによる膜性能の変化をできるだけ正確に推算することが必要となる。一般に水処理では、分子を対象とするナノろ過や限外ろ過、粒子や微生物を対象とする精密ろ過のプロセスが用いられる。このうちナノろ過と限外ろ過では、分子拡散モデルによる膜性能推算法がある程度の成功を収めているのに対して、精密ろ過プロセスの性能を正確に推算できる方法は未だ確立されていない。

近年、精密ろ過プロセスの膜性能を推算するために、計算機による流体力学シミュレーションが行われるようになってきた。ただし既往の流体力学シミュレーションは、膜近傍の溶媒流れを解いた後に、流れに乗って運動する粒子を追跡する方法である。これは粒子運動が溶媒流れに影響を及ぼさない one-way coupling model であり、高濃度粒子分散液流れを正確に解くことはできない。

一方、研究代表者らはこれまで高濃度粒子分散液流れのモデリングとシミュレーション研究に取り組んできており、シミュレータを圧力駆動デッドエンド精密ろ過プロセスに適用して、単純な細孔形状を持つ膜のファウリングと膜性能を評価できることを示した。研究代表者らが開発したシミュレータは粒子運動と溶媒流れの相互作用を考慮できる two-way coupling model であり、高濃度系の粒子挙動を直接計算することができる。精密ろ過プロセスの流体力学シミュレーション分野ではまったく新しいシミュレータによる、現実系の膜性能推算の可能性を見出したことが、本研究の動機となった。

2. 研究の目的

本研究では、現実系の精密ろ過プロセスにおける膜性能（透過流速や粒子阻止率）の推算法を確立することを目的とする。対象とする膜は膜厚方向に拡大・縮小、分岐・合流する細孔をもつ非対称膜に加えて、複雑に屈曲した細孔をもつ多孔質膜である。また、対象粒子は球形だけでなく、棒状あるいは平板状粒子を含む。さらに、ろ過方式としてデッドエンドろ過とクロスフローろ過、そして定圧ろ過と定速ろ過を対象とする。これらの対象に対して、粒子分散液流れのシミュレーションを行って膜性能を評価する。そしてシミュレーション結果と精密ろ過実験の結果を比較することによって、シミュレーション・モデルの妥当性を検証する。

次に、妥当性が検証されたシミュレーション結果を用いて、現実系の精密ろ過プロセスにおけるファウリング・メカニズムを明らかにする。すなわち、個々の粒子の挙動がどの

ように膜細孔のファウリングを引き起こすかを詳細に検討することによって、完全閉塞や標準閉塞等のファウリング形態に当てはまらない、複雑細孔の膜に対するファウリング形態の特徴を明らかにする。さらに、得られたファウリング形態に対して、シミュレーション結果に基づいた膜性能の簡易推算式を作成する。すなわち、複雑な細孔形状を抽象化した入力変数とシミュレーションで得られた膜性能の定量的関係を用いて、シミュレーションなしで膜性能の大きな推算が可能になる新しい閉塞モデルを提案する。最後に、作成した膜性能の簡易推算式を精密ろ過実験に適用して、現実系のプロセスに対する推算能力を実証する。

3. 研究の方法

(1) 計算機とソフトウェアの導入

最新型の Linux パーソナル・コンピュータを導入するとともに、ソフトウェア開発用の FORTRAN および C コンパイラ、並列化のための OpenMP ライブラリを導入して、プログラムの開発と実行の環境を整備する。

(2) 複雑細孔膜のモデル化

拡大・縮小、合流・分岐、屈曲する細孔をモデル化するとともに、それらを組み合わせで多孔質膜をモデル化する。複雑な膜細孔形状の本質が流路の断面積変化と流線の方向変化にあると仮定すれば、拡大・縮小細孔、合流・分岐細孔、屈曲細孔は複数の直円筒の組み合わせで表現することが可能である。膜細孔形状を直円筒の組み合わせで表現することによって、粒子と膜細孔内面間の接触相互作用、静電相互作用、分子間相互作用を二体間ポテンシャルの解析式で表すことができ、効率的なシミュレーション・モデルが実現できる。

(3) 複雑細孔膜のろ過シミュレーション

(2) でモデル化した複雑細孔膜に対して、球形粒子を用いたデッドエンドおよびクロスフローろ過シミュレーションをおこなう。定圧ろ過と定速ろ過について、様々な操作条件における膜性能を計算する。

(4) 非球形粒子のモデル化

分子動力学において高分子鎖を表現するために考案された "bead-spring model" に基づき、非球形粒子を球形要素の連結としてモデル化する。このモデルでは球形要素同士が伸縮バネと回転バネによって連結されており、引っ張り・圧縮や曲げに対する非球形粒子の応答を記述することができる。各要素を球形にすることによって、非球形粒子の相互作用を球形要素の相互作用の和としてモデル化することができる。

(5) 非球形粒子のろ過シミュレーション

(4) でモデル化した非球形粒子に対して、直円筒細孔膜や複雑細孔膜を用いたデッドエン

ドおよびクロスフローろ過シミュレーションを行う。定圧ろ過と定速ろ過について、様々な操作条件における膜性能を計算する。

(6) シミュレーション・モデルの検証

連携研究者のもとで、球形粒子を用いたデッドエンドおよびクロスフロー精密ろ過実験を行い、得られた膜性能をシミュレーション結果と比較してモデルの検証をおこなう。また、膜工学を専門とする他大学の研究者に本研究で開発されるシミュレータを提供して共同研究をおこない、モデル検証のためのフィードバックを得る。検証の結果、モデルが十分な精度で実験結果を再現できない場合は、モデルの改良と検証を繰り返す。

(7) メカニズムの解明と膜性能推算法の提案
シミュレーションによって個々の粒子の運動を追跡し、ファウリングの過程を詳細に可視化する。そしてファウリングのきっかけ、ケーキ層の成長速度、粒子の付着と脱離の平衡状態などに注目して、精密ろ過膜のファウリング・メカニズムを明らかにする。また、得られたファウリング・メカニズムに基づいて、従来の完全閉塞モデルや標準閉塞モデルで記述できない現実系の膜の透過流束や粒子阻止率の変化を見積もることのできる推算法を提案する。

4. 研究成果

(1) 複雑細孔膜のモデル化とシミュレーション
3つの直円筒の組み合わせで、屈曲した膜細孔をモデル化した複雑細孔膜に対するシミュレーション結果を図1に示す。粒子のファウリングは主に膜の供給液側で発生するとともに、細孔内の屈曲部にも粒子が停留することが分かる。この他、直円筒の組み合わせによって、拡大・縮小、分岐・合流する膜細孔のモデル化にも成功した。

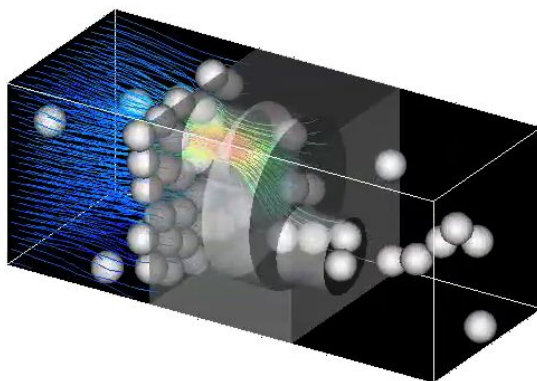


図1 屈曲細孔膜の精密ろ過シミュレーション結果。流れは右向きで、青い流線の領域は流速が小さく、赤い領域は流速が大きい。

(2) 非球形粒子のモデル化とシミュレーション
図2に示すように、“bead-spring model”を用いて、球セグメントを1次元的に連結した棒粒子と、2次元的に連結した平板粒子をモデ

ル化した。このとき、各球セグメントを半径長さずらして連結することによって、表面の凸凹が少ない棒と平板を作成した。研究期間中に膜ろ過シミュレーションを行うには至らなかったが、せん断流れや圧力駆動流れのシミュレーションを行うことによって、非球形粒子独特の配向性を調べることができた。

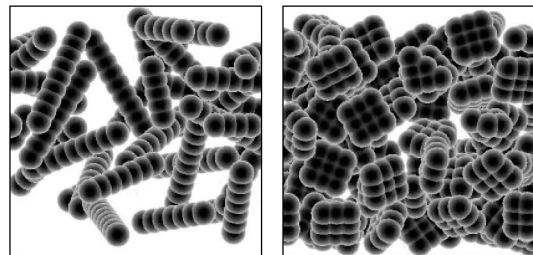


図2 棒粒子と平板粒子のモデル化。9個の球セグメントを用いて、太さ-長さ比 1:5 の棒粒子（左）と、厚さ-幅・奥行き比 1:2 の平板粒子（右）を作成した。

(3) シミュレーション・モデルの検証

透過流束の理論式が与えられているろ過シミュレーションを行い、シミュレーション・モデルの検証を行った。ケーキろ過の場合に、初期透過流束が同じになるよう設定したシミュレーションと Kozeny Carman 理論を比較した結果を図3に示す。初期透過流束のずれの影響はあるものの、シミュレーション結果は理論式の透過流束減少傾向をほぼ忠実に再現しており、モデルの妥当性が検証されたと言える。

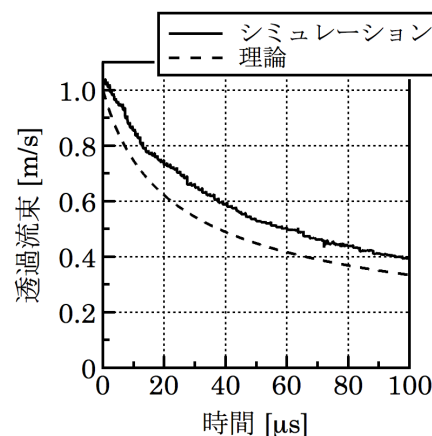


図3 ケーキろ過時の透過流束の時間変化

(4) メカニズムの解明と膜性能推算法の提案
デッドエンド精密ろ過に対して、屈曲細孔膜のろ過シミュレーションを行い、粒子分散液中の電解質濃度の影響を調べた。その結果、粒子間の静電相互作用がファウリング形態に影響を及ぼすため、電解質濃度によって粒子阻止率が変化することが認められた。一方、クロスフロー精密ろ過に対して、膜細孔径による透過流束の時間変化を調べた。その結果、膜細孔径が粒子径に対して十分大きい場合はファウリングがろ過膜の透過液側でも発

生するとともに、ファウリングの定常状態では、より小さな膜細孔径の場合に比べて透過流束が小さくなることがわかった。さらにデッドエンドろ過に対して、膜細孔径と開孔比を変えたシミュレーションと実験を行った。その結果、ファウリングがろ過膜の供給液側で発生する条件と、透過液側で発生する条件が定量的に明らかになり、図4に示すように、開孔比と膜細孔径を軸に取ったファウリング形態の相図を作成することができた。

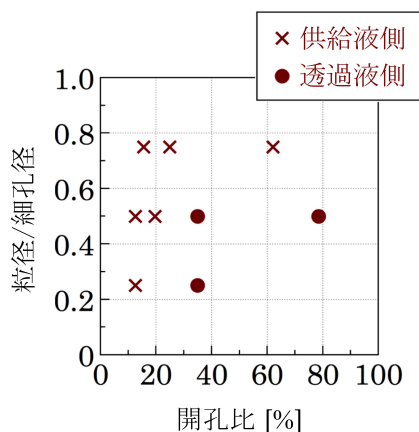


図4 ファウリング形態の相図

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

- (1) 藤田昌大, 連載講座「計算機粉体工学の課題と展望」5.メソスケール気液固混相流シミュレーションの方法, 粉体工学会誌, 査読なし, Vol. 49, No. 8, 2012, pp. 622-631.
<http://www.sptj.jp/>
- (2) T. Ando, K. Akamatsu, S. Nakao, M. Fujita, Simulation of Fouling and Backwash Dynamics in Dead-end Microfiltration: Effect of Pore Size, Journal of Membrane Science, 査読有, Vol. 392-393, 2012, pp. 48-57.
DOI: 10.1016/j.memsci.2011.11.051

〔学会発表〕(計19件)

- (1) 藤田昌大, 精密ろ過膜ファウリングの直接数値シミュレーション, 先端膜工学研究推進機構秋季講演会2013, 2013年9月10日, 兵庫・神戸大学.
- (2) 金杉尚将, 赤松憲樹, 小池修, 藤田昌大, 中尾真一, SNAP-Fを用いたデッドエンドろ過における膜ファウリングシミュレーション, 化学工学会盛岡大会2013, 2013年8月8~9日, 岩手・岩手大学.
- (3) 赤松憲樹, 金杉尚将, 小池修, 藤田昌大, 中尾真一, 粒子分散液のデッドエンドろ過において細孔径と開孔比がファウリング挙動に与える影響, 化学工学会第78回年会, 2013年3月17~19日, 大阪・大阪大学.

- (4) 井上真生, 安藤努, 小池修, 藤田昌大, 微粒子分散系のクロスフロー精密ろ過プロセスに関する直接数値シミュレーション, 日本機械学会関東学生会第52回学生員卒業研究発表講演会, 2013年3月15日, 東京・首都大学東京.
- (5) 穴戸栄二, 市村重俊, 藤田昌大, 小池修, 膜ファウリングに対する細孔構造の影響とメソシミュレーターによるアプローチ, 日本海水学会若手会第4回学生研究発表会, 2013年3月7日, 神奈川・横浜国立大学.
- (6) 金杉尚将, 赤松憲樹, 小池修, 藤田昌大, 中尾真一, SNAP-Fを用いたデッドエンドろ過における粒子の膜透過シミュレーション, 日本海水学会若手会第4回学生研究発表会, 2013年3月7日, 神奈川・横浜国立大学.
- (7) 小池修, 藤田昌大, 山口由岐夫, 微粒子分散液の円管内非ニュートン流れのシミュレーション, 化学工学会第44回秋季大会, 2012年09月19~21日, 宮城・東北大学.
- (8) 安藤努, 赤松憲樹, 藤田昌大, 中尾真一, Direct Simulation Model of Concentrated Particulate Flow in Pressure-Driven Dead-end Microfiltration, 化学工学会第43回秋季大会, 2011年9月14日, 愛知・名古屋工業大学.
- (9) 藤田昌大, 微粒子分散系のメソスケール・シミュレーション, 日本学術振興会プロセスシステム工学第143委員会2011年度第1回研究会, 2011年5月13日, 大阪・ホテルコスモスクエア国際交流センター.

〔図書〕(計1件)

- (1) 藤田昌大, 他(監修: 山口由岐夫, 編集: 大島寛, 他), テクノシステム, 分散・塗布・乾燥の基礎と応用, 2014, 83-86, 175-178, 181-184, 375-382, 386-389.

〔その他〕

ホームページ等

http://nanotech.t.u-tokyo.ac.jp/index_msc2011.html

(研究代表者と連携研究者が参加していた産学連携活動で、本研究で開発された粒子分散液流れシミュレータが利用された。)

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
藤田 昌大 (FUJITA, Masahiro)
城西大学・理学部・教授
研究者番号: 40436530
- (2) 連携研究者
中尾 真一 (NAKAO, Shin-ich)
工学院大学・工学部・教授
研究者番号: 00155665