

# ケーキろ過操作における 各種パラメータ間の 普遍的相関関係

住友化学工業(株) 生産技術センター

遠藤 禎行  
金星 直彦

## A General Correlation Curve for Dust Cake Filtration in Solid-Liquid Separation

Sumitomo Chemical Co., Ltd.

Process and Production Technology Center

Yoshiyuki ENDO

Tadahiko KINBOSHI

The permeability of dust cakes on a filter in solid-liquid separation was studied theoretically and experimentally. The study investigated in particular the effects of particle polydispersity and shape factor on the permeability. In the experimental study, water permeability tests were carried out on six different types of powders including monodisperse spheres and various polydisperse non-spherical particles. Using the parameters derived from a theory that took into account the effects of the particle polydispersity and particle shape, all the collected data were found to correlate well with the dust cake porosity ranging from 0.3 to 0.7. The results suggest that the well-known Kozeny-Carman equation is not applicable to fluid permeation through particle layers having wide powder size distributions or irregular shape. With the proposed correlation, the permeation resistance of liquid across powder layers consisting of non-spherical and polydisperse particles can be quantified. The correlation is useful for the design of filtration devices for colloidal suspensions.

### はじめに

固液分離装置の設計において、粉体層の透過抵抗を求めることは重要である。その際、透過抵抗は一般に透過試験と呼ばれる方法によって求められる。この透過試験の基本原理は充填塔などの設計(圧力損失の算出)にも使われている。そのため充填層の透過率に関する研究は多数報告されている<sup>1-9)</sup>。それらの研究は興味深いものが多い一方で、広い粒径分布をもった非球形粒子からなる充填層に対しては毛管現象や流動面で誤差の多い仮定の上に成り立っており、普遍性に欠ける。

粒径分布が広い粉体の場合には、その平均粒子径を代表値として用いて透過率の計算をしても実際の結果と一致しないことがある。Gupte<sup>6)</sup>や MacDonab<sup>7)</sup>らは、Kozeny-Carman の式や Ergun の式が粒径分布が広い粒子層の場合に適用できないことを示している。それは、粒子サイズの異なる各粒径ごとの透過抵抗の平均値が、平均粒子径を用いて算出される透過抵抗値とかならずしも一致しないことに依る。ところが、従来の研究では非球形の多分散粒子(分布の広い粒子群)からなる種々の粒子層に対して、Kozeny-Carman

の式が用いられている。本質的に Kozeny-Carman の式に基づいた透過試験からでは粒子形状と多分散性(粒径分布の広さ)を分離して求めることができない。すなわち、この式からは比表面積(=粒子群の単位体積当りの全粒子の表面積)しか得られない。この比表面積は粒子形状と多分散性とはなっていないが、この式のみではこれら2つの因子を分けることができないのである。

実際の粉体を扱う限りは、この多分散性と粒子形状とを把握しておくことは透過抵抗を見積る上で重要である。にもかかわらず、従来はそれがわからないままに、実験を行ってきた。従来の研究では、それら2つの効果を独立して理論的に考えることがなされていなかったのである。

本報では、上記の問題を克服するために、粒子形状と多分散性の両方の効果を考慮した理論式を示し、粉体層を通過する液体の透過抵抗について実験的に検討した結果について述べる。

### 理論

ここで示す理論式の導出は個々の粒子の流体抵抗力の総和から透過抵抗力が得られるという古典的な手法

に基づいている<sup>10-12</sup>。導出に際して次の4つの仮定をおく。

1) 粒径分布は次の対数正規分布で与えられるとする。

$$f(\ln d_p) = \frac{1}{\sqrt{2} \ln g} \exp\left[-\frac{(\ln d_p - \ln d_{pg})^2}{2 \ln^2 g}\right]$$

2) フィルター上に形成された粒子充填層(ケーキ層)の構造は均一、すなわち、粒子はランダムに充填されているとする。

3) 空隙率関数  $\nu(\cdot)$  は空隙率  $\epsilon$  のみの関数であるとする。この  $\nu(\cdot)$  は、粒子層内にある隣接する粒子同士の距離の効果を検討するためのもので、 $\epsilon$  が減少するほど透過する流体の見かけの粘度が増加することを補正する関数である<sup>13</sup>。この  $\nu(\cdot)$  については、多くの実験式が報告されているが<sup>8,14,15</sup>、理論的に導出されたものはない。

4) 本研究では、すべて粒子基準の Reynolds 数が 10 以下のところで実験を行っているため、粒子充填層内の粒子まわりの流れは Stokes 域であるとする。なお、高 Reynolds 数域の理論については文献<sup>10</sup>に示されている。

粒子充填層(ケーキ層)の圧力損失は充填層を構成する各粒子の流体抵抗力の総和である。これは次の基礎式で与えられる。

$$P_{cus}A = F_c u_i A H \quad (1)$$

ここで、 $P_c$  はケーキ層の圧力損失、 $F_c$  はケーキ層単位体積内にある各粒子の流体抵抗力の総和、 $u_s$  はケーキ層を流れる流体の空筒速度、 $u_i$  は粒子回りの実際の流速で、 $u_s = u_i$  なる関係がある。 $\epsilon$  は粒子層の空隙率、 $A$  はろ過面積、 $H$  はケーキ層の高さである。

Stokes 域では、ケーキ層内にある1個の粒子に作用する流体抵抗力は次式で与えられる。

$$F_i = 3 \mu d_v u_i \quad (2)$$

ここで、 $\mu$  は流体の粘度、 $d_v$  は粒子の等体積球相当径、 $\kappa$  は動力学的形状係数である。 $\kappa$  は着目粒子の流体抵抗力を等体積球相当径を直径とする球の流体抵抗力で割り算した値として定義される形状係数である<sup>16,17</sup>。(2)式を用いて、 $F_c$  は次のように表わせる。

$$F_c = F_i \nu(\epsilon) n_t \int f(\ln d_v) d(\ln d_v) \quad (3)$$

$$= 3 \mu u_i \nu(\epsilon) n_t d_{vg} \exp\left(\frac{1}{2} \ln^2 g\right)$$

ここで、 $n_t$  はケーキ層単位体積内に存在する粒子の総数、 $d_{vg}$  は  $d_v$  の幾何平均径、 $g$  は幾何標準偏差である。

$n_t$  と空隙率  $\epsilon$  の関係は、

$$= 1 - \frac{1}{g} \int d_v^3 n_t f(\ln d_v) d(\ln d_v) \quad (4)$$

$$= 1 - \frac{1}{g} n_t \exp\left(3 \ln d_{vg} + \frac{9}{2} \ln^2 g\right)$$

として与えられるので、(3)(4)式を(1)式に代入して、次式が得られる。

$$\frac{P_c R}{\mu u_s H} = 18 \nu\left(\frac{\epsilon}{2}\right) \left(R d_{vg}^2 \exp\left(\frac{4}{2} \ln^2 g\right)\right) \quad (5)$$

この式は両辺とも無次元であることに注目したい。もし、粒子が球形で単分散(粒径がほとんど同じで粒径が揃っていること、このとき  $g = 1$ )ならば、この式は次式となる。

$$\frac{P_c d_p^2}{\mu u_s H} = 18 \nu\left(\frac{\epsilon}{2}\right) \quad (6)$$

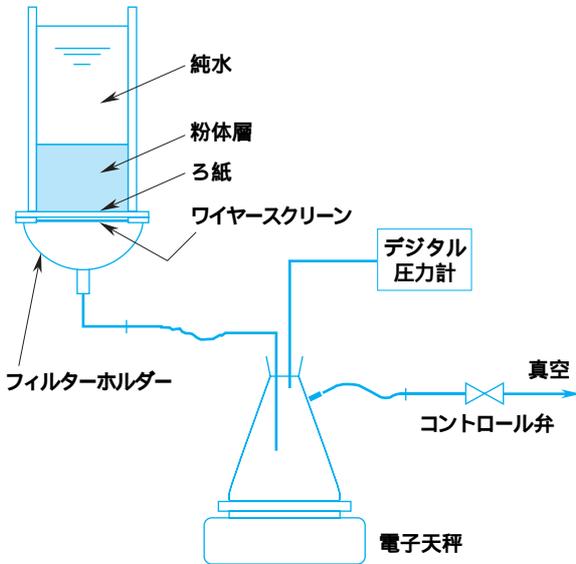
さらに、空隙率関数が  $\nu(\epsilon) = 10(1 - \epsilon)$  ならば、(6)式は Kozeny-Carman の式となる。(5)式には、幾何標準偏差  $g$  と動力学的形状係数  $\kappa$  の2つの重要な因子が含まれている。 $\kappa (> 1)$  が大きくなる(分布が広がる)と  $\exp(4 \ln^2 g)$  の値は急激に増加する。たとえば  $g = 1, 2, 3$  に対してそれぞれ  $\exp(4 \ln^2 g) = 1.0, 6.8, 125$  となる。 $g$  が大きな多分散粒子の場合にこの効果は無視できない。次に、動力学的形状係数  $\kappa$  であるが、球形粒子ならば  $\kappa = 1$  であるが、非球形になると1より大きな値をとる。後述の実験で使ったタルク粒子の場合には  $\kappa = 2.04$  にもなる<sup>16</sup>。このような場合に  $\nu(\epsilon)$  の効果は無視できない。

## 実験方法

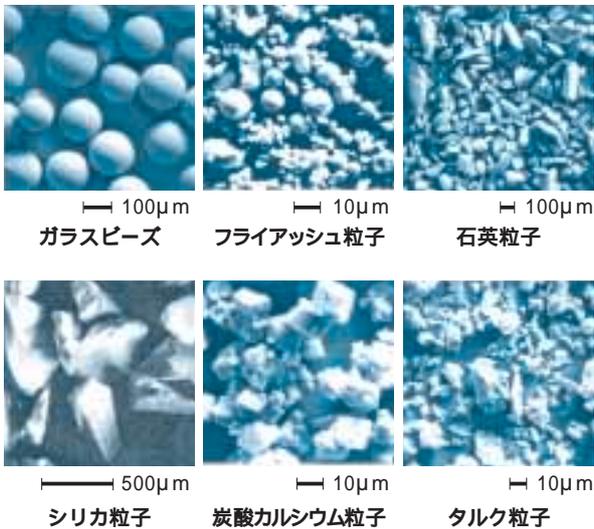
はじめに、粉体を約 200cm<sup>3</sup> の純水(水温は 290 - 295 K)中に懸濁させ、粒子懸濁液を調製した。この懸濁液を第1図に示したフィルターホルダーに供給した。フィルターホルダーにはあらかじめ紙(東洋ろ紙 Type2、有効ろ過面積 17.72cm<sup>2</sup>、内径 47.5mm)がセットしてある。真空吸引によって、懸濁液の水をフラスコ内に吸引し、ケーキ層を形成させた。

ケーキ層形成後にケーキ層表面の平面度を維持したまま、約 500cm<sup>3</sup> の純水をゆっくりフィルターホルダーに注いだ。真空ラインのバルブを開けて、透過試験を開始した。ケーキ層を透過した純水の質量を電子天秤にて計量し、同時にデジタル圧力計(オカノワークス製 VP-76A)にて、ケーキ層の圧力損失を計測した。水の流量と圧力損失が定常に達したときの両値を記録した。このような実験の前と後とで、ケーキ層の高さをチェックしたが、その差は3%以内であったので、その影響は無視した。

第1図 実験装置



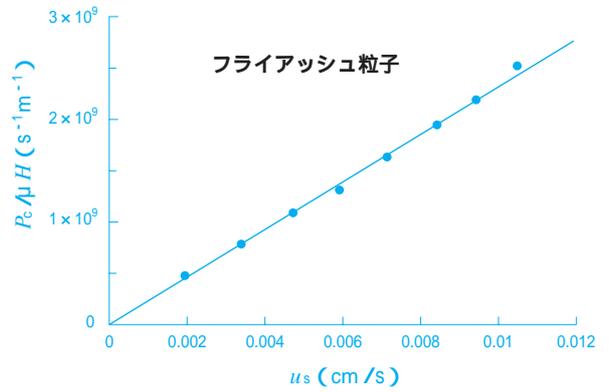
第2図 実験で使った粒子のSEM写真



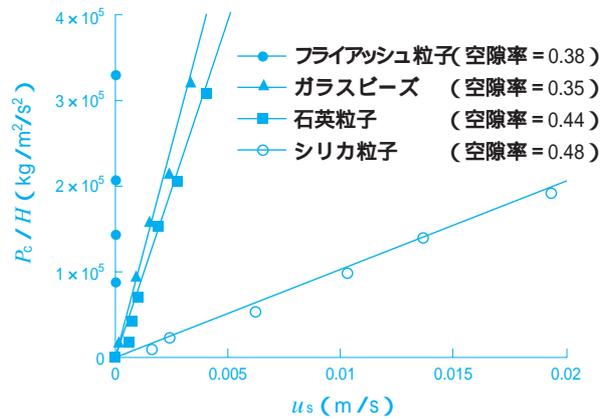
実験結果と考察

第2図に実験で使った6種類の粒子のSEM写真を示す。ガラスビーズは球形で単分散の粒子である。フライアッシュは球形であるが多分散の粒子である。石英とシリカ粒子はともに多分散で角のある形状をしている。炭酸カルシウムは立方体に近い形状で、タルク粒子はフレーク状である。第1表にこれら粒子

第3図 実験結果の一例(フライアッシュ粒子)



第4図 各種粉体の測定結果例



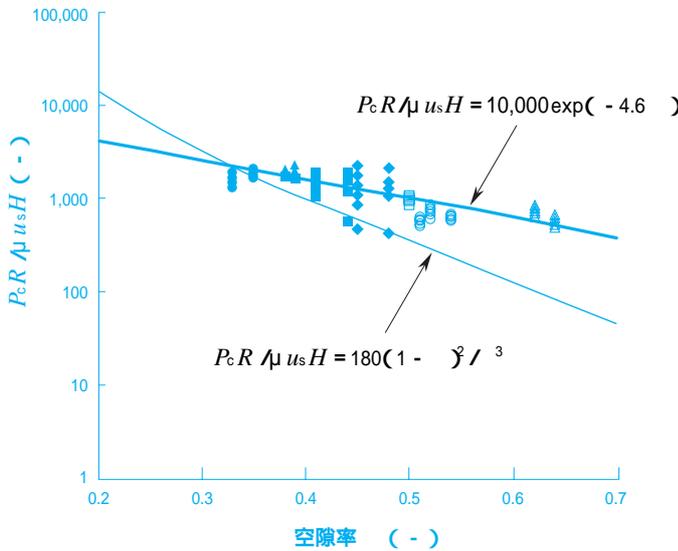
の物性を示す。粒径分布(幾何平均径NMDと幾何標準偏差  $\sigma_g$ )はMalvern製のMastersizer S(Type MAM5005)によって計測した。この装置の粒径測定原理は、レーザー回折法と光散乱法の組合せに基づいている。第1表に示した動力的形状係数は文献16)から引用した。ただし、炭酸カルシウム粒子は立方体( $\phi = 1.08^{17)}$ )に非常に近いので  $\phi = 1.1$  とした。

第3図に測定結果の一例(フライアッシュ粒子)を示す。横軸の流速の増加に比例してケーキ層の圧力損失  $P_c$ (縦軸に相当)が増加することがわかる。 $P_c$  はろ紙の圧力損失を除いたケーキ層のみの圧力損失である。第4図に4種類の粒子の測定結果を比較して示す。ケーキ層の空隙率が0.4前後のものを選んでプロットしているが、粒子の種類によって直線の傾き

第1表 実験で使った粒子の物性

粒子名		ガラスビーズ	フライアッシュ	石英	シリカ	炭酸カルシウム	タルク
個数基準幾何平均径	NMD (µm)	138	2.0	82	480	7.0	2.5
幾何標準偏差	$\sigma_g$ (-)	1.15	2.40	1.84	1.29	1.64	2.14
動力的形状係数	(-)	1.0	1.0	1.36	1.57	1.1	2.04
粒子密度	$\rho$ (kg/m³)	2400	2150	2450	2650	2710	2750

第5図 無次元相関関係で表した実験結果



●	ガラスビーズ	(H = 100mm,	= 0.35)
●	ガラスビーズ	(H = 50mm,	= 0.33)
●	ガラスビーズ	(H = 20mm,	= 0.33)
▲	フライアッシュ粒子	(H = 20mm,	v = 0.38)
▲	フライアッシュ粒子	(H = 10mm,	v = 0.39)
■	石英粒子	(H = 100mm,	= 0.44)
■	石英粒子	(H = 50mm,	= 0.41)
◆	シリカ粒子	(H = 100mm,	= 0.48)
◆	シリカ粒子	(H = 50mm,	= 0.45)
○	炭酸カルシウム粒子	(H = 30mm,	= 0.54)
○	炭酸カルシウム粒子	(H = 20mm,	= 0.50)
○	炭酸カルシウム粒子	(H = 15mm,	= 0.51)
○	炭酸カルシウム粒子	(H = 10mm,	= 0.52)
△	タルク粒子	(H = 20mm,	= 0.62)
△	タルク粒子	(H = 10mm,	= 0.64)
—	計算線		
—	計算線		

が異なることがわかる。このような比例関係はすべての粒子に対して見られるが、直線の傾きは、粒子充填層の物性(粒径分布、粒子形状、空隙率など)に依存して異なる。このような物性の異なるものに対して、普遍性を調べるために、第5図に全粒子の全実験データをプロットした。この図は無次元項で表わされた(5)式に基づいており、図の縦軸は(5)式の左辺を、横軸はケーキ層の空隙率である。図中の細い実線は、(5)式で  $\nu(\epsilon) = 10(1 - \epsilon)/\epsilon$  を仮定した計算線である。空隙率が約0.4以下で、実測値はほぼこの計算線に一致している。図中の太い実線は全実測値にフィットするように引いた計算線である。第5図のような相関は、先の実験方法のところで述べた小さなフィルターホルダー(内径47.5mmの円筒形)を用いた簡単な透過試験から得られる。この相関関係は、固液分離する場合のろ過器の計設やろ過操作条件の決定に役立つ。

第5図の相関は、非球形でかつ多分散粒子からなるケーキ層の透過抵抗が(5)式で定量的に評価できることを示す結果である。粒子の形状や粒径分布の多分散性を考慮した(5)式は、従来から用いられている Kozeny-Carman の式に代わるべきものである。

## おわりに

フィルター上のケーキ層の液透過率に及ぼす粒子形状と粒径分布広がりの影響について理論と実験の両面から検討した。粒子形状と粒径分布の広がり効果については、球形単分散粒子および非球形多分散粒子を含む6種類の粉体を用いて水を透過する実験から検証できた。すなわち、広い粒径分布や不整形粒子を用いた実験をも含めて実験結果は理論解析結果によ

って非常によく相関できた。ここで示した相関関係は、従来から用いられている Kozeny-Carman の式が狭い粒径分布を有しかつ形状の明確に定まった粒子に対してのみにしか適用できないという問題を解決したものである。通常用いられる粉体は、非球形で粒径分布が広いものがほとんどで、ここで示した相関はそれらに対して適用でき、ケーキ層の透過率の定量的予測を可能にした。ここで示した方法は、ろ過器の設計やろ過の操作条件を決定する上での有力な手法となる。

## 使用記号

A	ろ過面積(m <sup>2</sup> )
d <sub>p</sub>	粒子径(m)
d <sub>pg</sub>	幾何平均径(m)
d <sub>v</sub>	等体積球相当径(m)
d <sub>vg</sub>	d <sub>v</sub> の幾何平均径(m)
f(lnd <sub>p</sub> )	粒径分布関数(確立密度関数)(-)
F <sub>c</sub>	粉体層単位体積内に存在する各粒子に働く流体抵抗力の総和(N)
F <sub>1</sub>	一個の粒子に作用する流体抵抗力(N)
H	ケーキ層の高さ(m)
n <sub>t</sub>	粉体層単位体積内に存在する粒子総数(m <sup>-3</sup> )
u <sub>s</sub>	空塔速度(ms <sup>-1</sup> )
u <sub>i</sub>	粉体層内を流れる流体の実速度(ms <sup>-1</sup> )
ν(ε)	空隙率関数(-)
R	(5)式で定義した関数
P <sub>c</sub>	ケーキ層の圧力損失(Pa)
	空隙率(-)
	動力学的形状係数(-)
μ	流体の粘度(Pa s)
ρ <sub>p</sub>	粒子密度(kg m <sup>-3</sup> )
g	幾何標準偏差(-)

## 引用文献

- 1) J. Kozeny : *Royal Academy of Science, Vienna, Proc. Class I* 136, 271 (1927)
- 2) P. C. Carman : *Trans. Int. Chem. Eng.*, London 15, 150 (1937)
- 3) P. C. Carman : *J. Soc. Chem. Ind.*, 57, 225(1938)
- 4) R. L. Blaine : *ASTM Bull.*, No.123, 51 (1943)
- 5) B. H. Kaye : *Powder Technol.*, 1, 11 (1967)
- 6) A. R. Gupte, Dr.-Ing. Ph. D. dissertation, University of Karlsruhe, Germany (1970)
- 7) I. F. Macdonald, M. S. El-Sayed, K. Mow and F. A. L. Dullien : *Ind. Eng. Chem. Fundamentals* 18, 199 (1970)
- 8) F. A. L. Dullien : *Porous Media-Fluid Transport and Pore Structure*, Academic Press, New York, p.157 (1979)
- 9) K. Shinohara : *Handbook of Powder Science and Technology 2nd ed*, M. E. Fayed and L. Otten ed., Chapman & Hall, New York, p.116 (1997)
- 10) Y. Endo, D.-R. Chen and D. Y. H. Pui : *Powder Technol.*, 98, 241 (1998)
- 11) Y. Endo, D.-R. Chen and D. Y. H. Pui : *Filtration and Separation*, March, 191 (1998)
- 12) J. Bear : *Dynamics of Fluids in Porous Media*, American Elsevier, New York, p.167 (1972)
- 13) T. G. M. van de Ven : *Colloidal Hydrodynamics*. Academic Press, London, p.222 (1989)
- 14) O. Molerus, M. H. Pahl and H. Rumpf : *Chemie. Ing. Tech.*, 43, 376 (1971)
- 15) H. Rumpf and A. R. Gupte : *Chemie. Ing. Tech.*, 43, 367 (1971)
- 16) C. N. Davies : *Particle-Fluid Interaction, J. Aerosol Sci.*, 10, 477 (1979)
- 17) W. C. Hinds : *Aerosol Technology*, Wiley, New York, p.48 (1984)

## PROFILE



遠藤 禎行

Yoshiyuki ENDO

住友化学工業株式会社  
生産技術センター  
大阪プロセスグループ  
主席研究員



金星 直彦

Tadahiko KINBOSHI

住友化学工業株式会社  
生産技術センター  
大阪プロセスグループ  
主任研究員