

## 粒子トラップを取り付けた気泡塔による有機懸濁粒子の分離

誌名	北海道大学水産学部研究彙報 = Bulletin of the Faculty of Fisheries, Hokkaido University
ISSN	00183458
著者	丸山, 英男 関, 秀司 鈴木, 翼 酒井, 信
巻/号	43巻4号
掲載ページ	p. 177-184
発行年月	1992年11月

粒子トラップを取り付けた気泡塔による有機懸濁粒子の分離

丸山 英男\*・関 秀司\*・鈴木 翼\*・酒井 信\*

Clarification of Organic Solid Suspension by Bubble Column

Hideo MARUYAMA\*, Hideshi SEKI\*, Akira SUZUKI\*  
and Makoto SAKAI\*

Abstract

A bubble column equipped with a particle trap was developed and applied to the removal of suspended organic solids from aqueous solutions. Clarification experiments for suspension of pulverized fish feed were conducted in a batch operation, changing the initial concentration of organic solids and the superficial gas velocity. The time course of clarification was fitted with a first order kinetics and the rate constants of solid recovery were evaluated. The percentage solid recovery at the equilibrium was ca. 80% throughout the experiments. The influence of particle size distribution of solids in aqueous solutions on the rate constant and the equilibrium solid recovery were discussed.

緒 言

養魚水槽水の水質を良好に保つためのシステムに関する研究は魚類の養殖や活魚輸送等の分野において非常に重要である。水質の主な汚染原因として、魚類の生理代謝物、残餌の分解によって生じるアンモニア、亜硝酸態窒素等などが挙げられている(佐野, 1979)。これらの汚染物質を除去する代表的な方法として、吸着法や微生物処理法などが従来用いられてきたが、吸着法の場合は吸着容量に限界があるため、定期的な吸着剤の交換あるいは再生処理を行う必要がある。また微生物法では、微生物膜が安定に働くまでに長時間を要し、さらに、膜内の微生物相が環境の変化を受け易いという問題点が残されている。飼料残渣や魚類排泄物等の有機懸濁物質(一次汚染物質)それ自身は魚類等にとって特に有害ではないが、先に述べた微生物分解によってアンモニアや亜硝酸態窒素等の二次的汚染物質を生ずる原料となるため、これらを速やかに水から除去することは、吸着法などの負荷を大幅に減少させることにつながり、長期的な水槽水の水質維持という観点から見れば、非常に有効なプロセスである。また、水中に存在する有機物質は水質の汚染源としてだけでなく、魚類等の成長や生存に重要な役割を果たしている水中の微量重金属類と結合することによってその濃度を低下させ、間接的に有害物質として働いているとの報告もある(Yang et al., 1983)。このように有機懸濁液の固液分離操作は特に水産分野で重要であるにもかかわらず、その研究例は非常に少ない。

気液界面への吸着を利用した分離操作としては、発泡性物質の泡沫分離法が古くから知られており、その養魚水槽水への適用例(丸山ら, 1991)も報告されているが、有機性懸濁物質を対象と

\* 北海道大学水産学部化学工学講座  
(Laboratory of Chemical Engineering, Faculty of Fisheries, Hokkaido University)

する気液界面を利用した固液分離操作はほとんど報告されていない。本報ではその基礎的研究として、塔頂部に固体粒子の捕集槽を取り付けた気泡塔を用い、粉碎養魚飼料をモデル物質として回分式分離実験を行い、固体粒子の除去過程について解析を行った。その結果、いくつかの有用な知見を得たので報告する。

### 実験装置および方法

#### 実験装置

本研究に用いた気泡塔の概略図を図1に示す。気泡塔本体は塔高51 cm、内径4.4 cmの亚克力パイプ製で、その上部に内径9.7 cm、深さ2.6 cmのポリエチレン製粒子捕集槽を、また塔底部には微細な気泡を発生させるためのガス分散器としてガラスフィルター（平均孔径10~15 μm）を取り付けたものを用いた。通気ガスとして空気を用い、コンプレッサーおよび流量調節バルブによって所定の空塔速度に調節した後、塔内に通気した。

#### 有機物懸濁液

市販されているエジマス稚魚用餌料（日本農産工業、ます1号）をボールミルによって約24時間粉碎したものを、蒸留水中に懸濁させて使用した。実験の直前に所定の濃度の懸濁液を調製し、これをマグネチックスターラーにより1時間攪はんして、水によくなじませた後、実験に用いた。

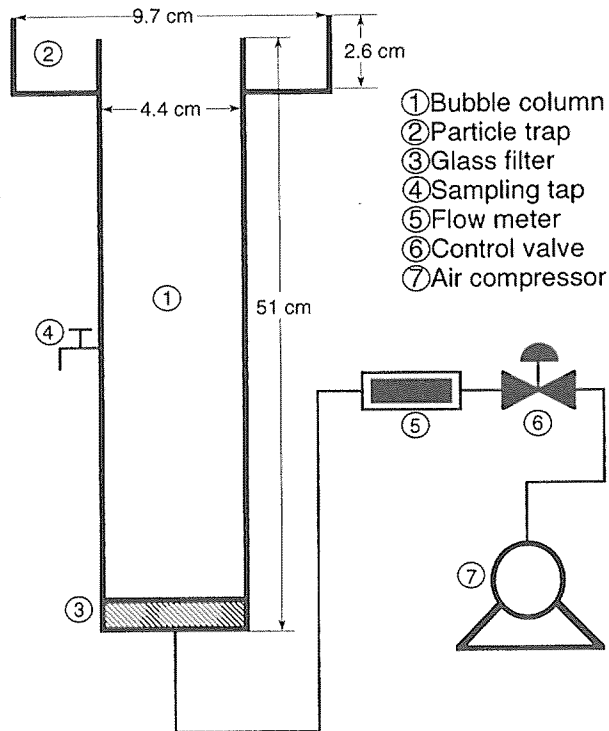


Fig. 1. Experimental setup.

粉碎飼料の密度および粒度分布はそれぞれピクノメーターおよびアンドレアゼンピベットを用いて測定した。

### 実験操作

所定濃度の有機物懸濁液 950 ml を、粒子が沈降しないように、よく振り混ぜながら素早く塔内に注ぎ入れた直後に、所定の空塔速度で通気を開始した。実験開始後適当な時間間隔で、塔中央部に取り付けたサンプリング・バルブから約 10 ml の試料を採取し、固体粒子濃度の時間的変化を測定した。固体濃度は、分光光度計（日本分光 U-best 30）によって波長 600 nm における吸光値を測定し、予め作成しておいた検量線から決定した。懸濁液の pH は、pH メーター（ORION RESEARCH 501）を用いて測定した。

### 結果および考察

#### 懸濁物除去過程の概要

懸濁物除去実験の結果をまとめて図 2 に示す。実験は懸濁物初期濃度およびガス空塔速度をそれぞれ 3 種類ずつ変え、計 9 種類の組み合わせについて行った。図のデータは通気開始後の塔内液の固体粒子除去率  $r$  ( $=1 - \text{時刻 } t \text{ における固体粒子濃度} / \text{固体粒子初期濃度}$ ) の時間変化を表している。

図 3 は、変化させた 2 つの実験条件のうち、特にガス空塔速度が除去過程に与える影響をよりわかりやすく示すため、図 2 のデータのうち 500 ppm の濃度のものだけを再プロットしたものである。750 および 1,000 ppm の濃度についてもほぼ同様であったので 1 例として 500 ppm に関するデータだけを示した。ガス空塔速度にほぼ比例して単位時間あたりの気泡発生量も増加しているはずであるが、その除去過程に与える影響はごく小さい。また、最終的に到達する除去率（平衡除去率）はすべての実験についてほぼ一定値（75～80%）を示しているのは注目すべきである。除去速度については懸濁物初期濃度の影響を比較的強く受け、1,000 ppm における除去速度は 500

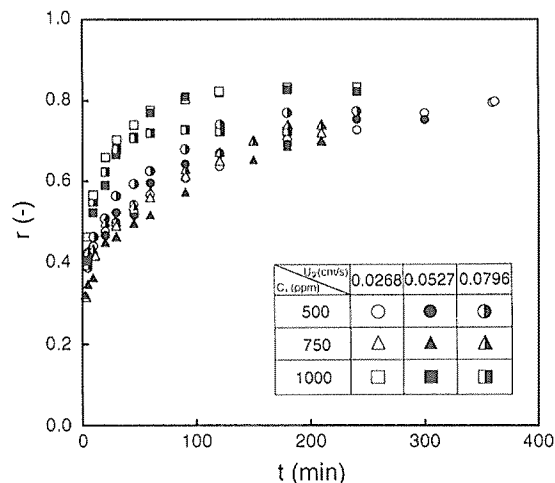


Fig. 2. Time variation of fractional recovery of solid particles in clarification of pulverized fish feed suspension.

および 750 ppm の場合に比較して、かなり上昇することが観測された。

得られた実験結果を要約すると、次のようになる。

- (1) 懸濁物除去過程へのガス空塔速度の影響はごく小さかった。
- (2) 実験開始直後 (5 分以内) に高速な除去過程が存在し、全体の約 40% の固体粒子がこの初期段階で除去された。
- (3) 平衡状態に至る速度過程は実験条件、特に懸濁物初期濃度の影響をかなり受けた。
- (4) 平衡除去率は懸濁物初期濃度およびガス空塔速度にかかわらず、約 75~80% の一定値を示した。

次節以降においては、この基本的な実験事実に基づき、本気泡塔装置の懸濁物除去機構についてさらに詳細な考察を行う。

### 粒子トラップによる懸濁物捕集機構

本研究で用いた固体粒子の分離除去装置は、基本的には気泡塔の上部に重力沈降の原理を利用した粒子トラップを取り付けたものであり、その粒子除去機構は主として次のようなものであると考えられる。すなわち、ガス空塔速度の除去過程に与える影響がごく小さいことから判断して、粒子を最終的に分離・除去しているのは、塔上部の重力沈降式粒子トラップであり、気泡塔は塔内に分散している粒子を上方へ運び上げ、これを粒子トラップへ連続的に供給する役割を果たしている。本研究で用いた粒子トラップが理想的水平流式重力沈降槽であると仮定すると、粒子の捕集効率、 $\eta$  は

$$\eta = v_g / u, \quad \text{ただし, } v_g > u \text{ のときは } \eta = 1 \quad (1)$$

と表すことができる (亀井, 1975)。ここに  $v_g$  は粒子の重力下における終末沈降速度であり、 $u$  は液溢流速度 (粒子トラップへ流入する液の体積流量/粒子トラップ床面積) である。粒子の終末沈降速度が Stokes の式に従う場合、粒径  $d_p$  の粒子に対する粒子トラップの捕集効率曲線は図 4 のように表される。横軸の  $d_{pc}$  は分離限界粒子径で、沈降速度が溢流速度に等しい粒子の粒径を意味

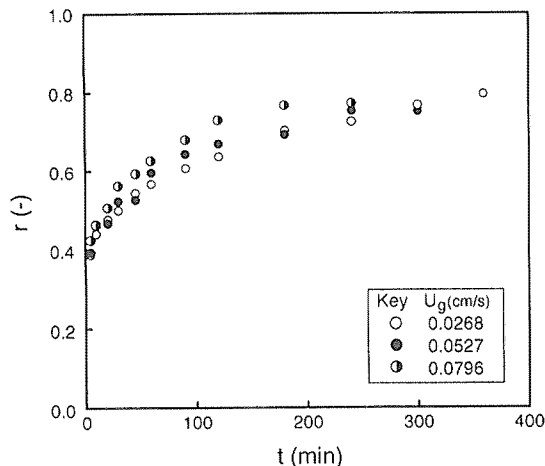


Fig. 3. Influence of superficial gas velocity on clarification process of pulverized fish feed suspension at the initial solid concentration of 500 ppm.

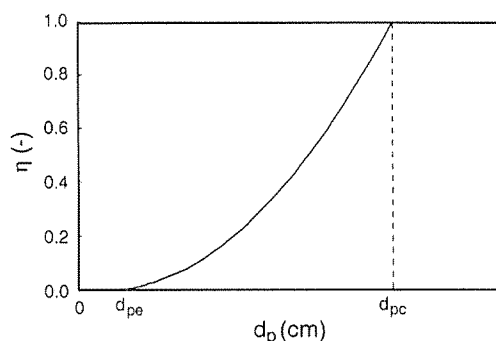


Fig. 4. Collection efficiency of ideal gravity settling chamber.

し、これより大なる粒径をもつ粒子は完全に粒子トラップに捕集される。また、 $d_{pc}$ は沈降限界粒子径であり、これより小なる粒子は事実上沈降速度が0であり、重力式の粒子トラップによっては捕集できない。さらにその中間成分である  $d_{pe} < d_p < d_{pc}$  の粒子は粒子トラップでそれぞれの粒径に応じた確率 ( $=\eta$ ) で部分的に捕集される成分である。したがって、先に述べた図2の実験結果と併せて考えると、本研究で扱った粉碎飼料はその粒径により、次の3成分から構成されていると考えるべきである。

- (1) 初期に高速除去される粗粒子成分 ( $d_p \geq d_{pc}$ ),
- (2) 緩やかな除去を受ける中間粒子成分 ( $d_{pe} < d_p < d_{pc}$ )

および

- (3) 除去不能な微粒子成分 ( $d_p \leq d_{pe}$ )。

粒子の分離プロセスにおいて、最も重要な因子は平衡除去率と除去速度であり、前者は微粒子成分が全粒子に占める分率によって、また後者は中間粒子成分の分率とその平均径によって決定されている。次節以降においては、これら3成分を分けている粒径 ( $d_{pc}$  および  $d_{pe}$ ) とそれぞれの全粒子に占めている分率について、定量的な考察を行う。

### 平衡除去率と粒度分布の関係

本研究が扱った懸濁物除去装置の除去特性は、前節で述べたように、除去対象である懸濁物の粒度分布に強く依存している。図5はアンドレアゼン・ピペット法によって求めた粉碎飼料粒子の粒度分布(通過率)曲線である。図の縦軸は通過率  $D(-)$ 、すなわち粒子の沈降速度径が  $d_p$  より小さい粒子の懸濁物全体に対する質量分率を表している。測定は500および1,000 ppmの2種類の懸濁物濃度について行った。粒子が非凝集性で、かつ干渉沈降をしていなければ、測定結果は濃度によらず一致しなければならない。また、干渉沈降を起していれば、濃度の大きい懸濁液の分布曲線は粒径の小さな方へ、すなわち左方へシフトするはずである。結果は、 $d_p < 0.004$  cmの領域において両曲線はほぼ一致しているが、 $d_p > 0.004$  cmの領域においては1,000 ppmの方が若干低い値を示している。このことは、粉碎飼料の初期濃度が高くなると、粒子はある程度凝集状態にあることを示唆している。また、この粒度分布曲線より、実験に使用した懸濁物の50%平均径は約0.001 cm (10  $\mu$ m) であり、かなり微細な粒子であることがわかる。

図6は先に示した本装置による懸濁物除去実験(図2)から得た平衡除去率、 $r_e$ 、を懸濁物初期濃度に対してプロットしたものであり(○)、破線は  $r_e$  の算術平均値 ( $=0.76$ ) を示す。また比較のために、アンドレアゼン・ピペットによる粒度分布測定実験(図5)において、液相の粉碎飼料

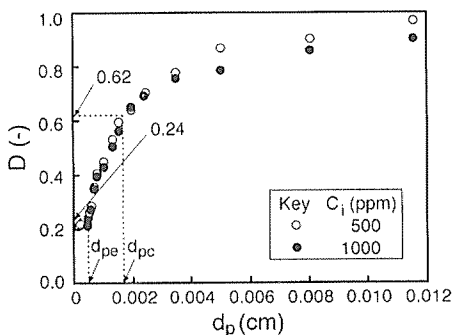


Fig. 5. Cumulative undersize distribution of pulverized fish feed.

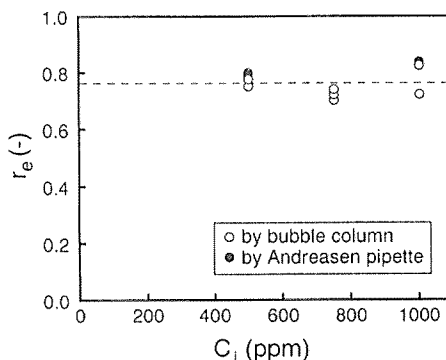


Fig. 6. Influence of initial solid concentration and superficial gas velocity on equilibrium fractional recovery.

濃度に変化が見られなくなった時点 (約 24 時間後) の粒子残存率も併せて示してある (●)。両者はよく一致しており、本研究に用いた気泡塔分離除去装置によっては除去不可能な粒子はまさに重力沈降速度が事実上 0 である粒子に他ならず、またその全粒子に占める質量割合は約 24% であることがわかる。図 5 の粒度分布曲線から通過率が 0.24 のときの粒径、すなわち  $d_{pe}$  を求めると、 $5 \times 10^{-4}$  cm ( $5 \mu\text{m}$ ) が得られ、本装置によって除去できない粒子は  $5 \mu\text{m}$  以下の粒子であり、この成分は粉碎飼料の 24% を占めていることが明らかになった。

#### 分離限界粒子径と除去速度定数

本システムの分離限界粒子径およびこれより大なる粒径をもつ粗粒子の質量分率を定めるため、および懸濁物の回分式除去速度を定量的に検討するため、除去過程を次に示す一次速度式で近似した。

$$-dC/dt = k(C - \alpha C_i) \quad (2)$$

ここで  $C$  (ppm) と  $C_i$  (ppm) はそれぞれ通気  $t$  分後における塔内液の懸濁物濃度と初期濃度を、また  $k$  ( $\text{min}^{-1}$ ) は除去速度定数を表す。また、 $\alpha$  は本法によっては除去不可能な粒子の全粒子に対する質量分率である。(2) 式を  $t=0 \sim t$  および  $C=C_i \sim C$  について積分することによって次式を得る。

$$\ln[(C - \alpha C_i)/(C_i - \alpha C_i)] = -kt \quad (3)$$

先に示した図 2 のデータを (3) 式によって再プロットした結果の一例 ( $C_i=500$  ppm の場合) を図 7 に示す。(3) 式の  $\alpha$  の値には、図 6 から求めた  $\alpha=0.24$  を用いた。プロットの結果は良好な直線性を示し、一次近似が妥当であることを示している。直線が原点を通らず、同じ切片をもつ直線となるのは、急速な除去を受ける粗粒子成分 ( $d_p > d_{pc}$ ) が含まれているためである。750 および 1,000 ppm についても同様な結果が得られ、その切片の算術平均値は  $-0.70$  であった。(3) 式において、 $\ln[(C - \alpha C_i)/(C_i - \alpha C_i)] = -0.70$  を満足する  $C/C_i$  は 0.62 であり、全粒子の 38% は通気開始直後にすでに捕集が完了していることを意味している。先の粒度分布曲線 (図 5) から通過率が 0.62 を示す粒径 ( $d_{pc}$ ) は  $1.7 \times 10^{-3}$  cm ( $17 \mu\text{m}$ ) であるから、本システムの分離限界粒子径は  $17 \mu\text{m}$  であり、急速な除去を受ける粗粒子成分の分率は 0.38 であると決定された。したがって、

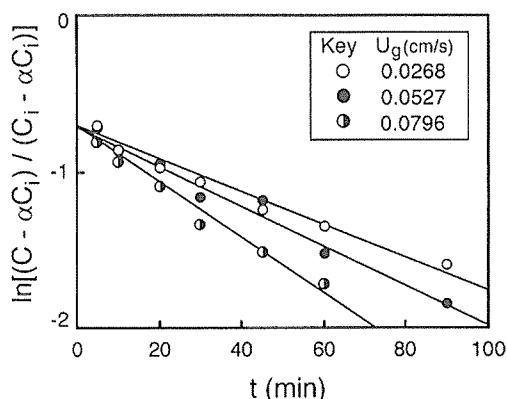


Fig. 7. Fitting of the data in Fig. 2 to Eq. (3).

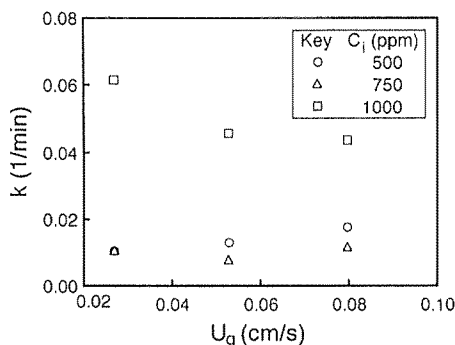


Fig. 8. Change of the rate constant of recovery with initial solid concentration and superficial gas velocity.

中間粒子成分の分率は残りの0.38であり、この成分が図7に示すように、ガス空塔速度および懸濁物初期濃度によって異なる速度で除去を受けている。図の傾きが中間粒子成分の除去速度定数 $k$ を示す。先の図2に示した全データについて $k$ を求めた結果を図8に示す。懸濁物初期濃度が500および750 ppmの間には大きな差は見られないが、1,000 ppmにおいては明らかに除去速度が増大している。この理由は粒子濃度の増大が粒子凝集を引き起こし、中間粒子成分の平均粒径を大きくしたことによると推察される。またこのことは1,000 ppmの場合、ガス空塔速度が小さい方が $k$ の値が大きくなっていることから定性的に理解し得る。すなわち、ガス空塔速度の増加は気泡発生量を増加させ、塔内懸濁液をより激しく攪はんするために、凝集体を再分散させてしまうためである。

## 結 言

上部に粒子トラップを取り付けた気泡塔を用いて、粉碎飼料をモデル懸濁液とした有機懸濁粒子除去実験を行い、以下の知見を得た。

- (1) 本装置による平衡除去率は、ガス空塔速度および懸濁物初期濃度にかかわらず、ほぼ一定(76%)である。
- (2) ガス空塔速度の懸濁物除去過程に与える影響がごく小さいことから、気泡塔部分は主として固体粒子を上方の粒子トラップまで運び上げる役割を果たしている。
- (3) 粒子トラップは重力沈降槽の原理によって粒子を捕集しており、その分離限界径は $17\ \mu\text{m}$ である。
- (4) 本研究で用いた粉碎飼料は次の3成分から構成されている：初期に高速に除去される38%の粗粒子成分( $d_p > 17\ \mu\text{m}$ )、緩慢な除去を受ける38%の中間粒子成分( $5\ \mu\text{m} < d_p < 17\ \mu\text{m}$ )、および本装置によっては除去が不可能な24%の微粒子成分( $d_p < 5\ \mu\text{m}$ )。



文 献

- 亀井三郎 (1975). 化学機械の理論と計算・第2版, 611 p. 産業図書, 東京.
- 佐野和生 (1979). 水産養殖と水, 244 p. サイエンティスト社, 東京.
- 丸山俊明・奥積昌世・佐伯和昭・嶋村 茂 (1991). 活魚輸送, 養殖における泡沫分離法の飼育海水浄化能, 日本水産学会誌 57, 219-225.
- Yang, W.T., Hanlon, R.T., Krejci, M.E., Hixon, R.F. and Hulet, W.H. (1983). Laboratory rearing of *Loligo opalescens*, the market squid of California. *Aquaculture* 31, 77-88.