

## 〈ノート〉

## 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とせん断速度の影響

福田(早見)美意<sup>1)</sup>, 毛受卓<sup>1)</sup>, 出健志<sup>1)</sup>内田竜朗<sup>2)</sup>, 足立泰久<sup>3)</sup><sup>1)</sup> 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)<sup>2)</sup> 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)<sup>3)</sup> 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

せん断力 ( $G$  値) の違いがフロクの構造形成に与える影響を調べるため、横置き外筒回転型クエットデバイスによる層流場において、カオリナイト-PACl の凝集過程を可視化した。PACl 注入率を固定した結果、フロクの成長段階では、各回転数ともほぼ  $D_{90} \propto GT^{0.5}$  が示された ( $D_{90}$  は累積体積分率 90% 径,  $GT$  値は攪拌強度と時間の積)。この関係は、 $G$  値に対して逓減することから、成長領域でもフロク破壊が一定割合で生じていることが示唆された。また、 $G$  値が高い条件では、成長後の破壊が顕著になることを確認した。

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

原稿受付 2023.9.29 原稿受理 2023.12.25

EICA: 28(4) 62-69

## 1. はじめに

凝集は、上水・水処理分野において、重力沈降、膜分離など、固液分離の前処理操作として適用されている最も汎用的な手法の一つである。凝集物であるフロクの性質や、フロクの形成過程は、凝集条件によって様々に変化する。凝集条件は、凝集剤の種類や凝集剤注入時の被処理水の pH、処理対象である原水の水質による化学的条件と、攪拌強度や滞留時間などの物理的条件がある。それぞれの条件を適切に設定し、フロクの大きさや密度など、フロクの物性をコントロールする技術が求められている。例えば、初期の凝集速度やフロク構造の発達具合は、 $GT$  値 (攪拌強度と攪拌時間の積) によって定まるとされ、 $GT$  値を用いた凝集初期段階を制御する有効性が議論されている<sup>1-3)</sup>。

前報<sup>4)</sup>では、外筒回転型の回転二重円筒装置であるクエットデバイスを用い、層流状態のせん断流れ場において、フロクの形成過程を可視化する実験系を構築した。観察対象である模擬フロクは、カオリナイト 100 mg/L とポリ塩化アルミニウム系凝集剤 (PACl) 50 mg/L とし、クエットデバイスの回転数 60 rpm における一様な層流流れ場において、フロ

クが時間とともに形成する過程を撮影し、画像解析により面積相当径を求め、フロク径分布の経時変化、並びに画像に現れるフロクの形態などについて考察した。その結果、以下の現象が確認された。フロクは初期の段階で急速に成長するが、ある径を最大としてそれ以上には大きくならなかった。最大径を超えて成長しようとしたフロクは、流れ場の作用で破壊された。破壊によって生じた細片は、大型のフロクに取り込まれて再凝集した。最大径付近にあるフロクは、流れ場に対しより安定な構造に充填されるように再配列し、高密度化していく様子が確認された。高密度化したフロクは、沈降速度が高いため固液分離に有利であり、沈澱池の小型化などの水処理設備の簡略化につながる。また、水中のフロクは大きさ分布を持つため、統計的なデータ整理を行い、体積基準で算出した累積頻度分布 90% 径 ( $D_{90}$ ) をフロク径の代表値として選択した。このような前報の結果は、フロクの構造形成とその成長、さらにその後続くフロクの高密度化による構造変化を、凝集剤や pH などの化学的条件<sup>5)</sup>だけではなく、せん断速度や滞留時間などの機械的条件によっても制御できる可能性を明瞭に示している点で重要である。

そこで本報では、前報で得られた結果に対し、さら

に詳細な検討を加えるため、カオリナイトとPAClの化学的条件を一定にし、外筒回転型クエットデバイスの回転数を6段階に変化させる実験を行った。 $D_{90}$ と $GT$ 値の関係を撮影と画像解析によって測定した結果について報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 クエットデバイスと撮影機器

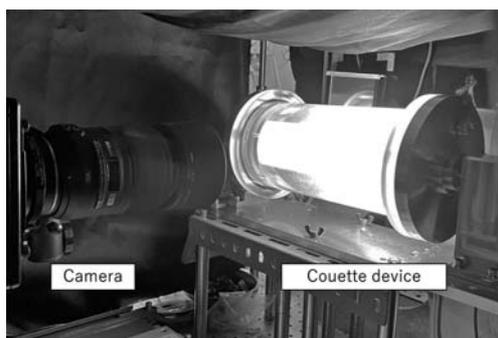
**Photo. 1** に試験装置の写真を示す。撮影装置と試験装置、試験水、画像解析手法は、前報<sup>4)</sup>と同様で、外筒回転型のクエットデバイスを用い、カオリナイト(CAS No. 1332-58-78)とPAClによるフロックの成長と破壊の凝集プロセスについて、ハイスピードカメラ(Photron FASTCAM Mini)で撮影した画像をオープンソースの画像処理・解析ソフトウェア<sup>6)</sup>によって解析した。カオリナイトの中心粒径をレーザー回折式粒度分布計(SALD-3100, 島津製作所)で実測した結果、 $4.858 \mu\text{m}$ であった。この値をカオリナイトの一次粒子径とし、凝集速度の検討に使用した。クエットデバイスの外筒の内寸直径は11.5 cm, 内筒の外寸直径は9 cm, 間隙 $d_{\text{gap}}$ は1.25 cm, 円筒の長さは26 cmであり、間隙の容積は約1 Lであった。回転時、試験水が封入されている間隙の速度勾配(ずり速度)は装置内すべてにおいて一様で一定であり、この値を実質的な $G$ 値(攪拌強度)とみなすことが出来る。従って、 $G$ 値は

$$G=2\pi n_r R/60 d_{\text{gap}} \quad \dots\text{式}[1]$$

で計算される。ここで、 $G$ : 攪拌強度(1/s),  $n_r$ : 外筒の回転数(rpm),  $R$ : 外筒の内寸半径(cm),  $d_{\text{gap}}$ : 内外筒の間隙幅(cm)である。容器内では、流れの方向に平行な面において、式[2]で計算されるせん断応力 $\tau$ (N/m<sup>2</sup>)が生じている。

$$\tau=\mu U/h \quad \dots\text{式}[2]$$

$\mu$ は水の粘性係数(Ns/m<sup>2</sup>),  $U$ は壁面の移動速度(m/s),  $h$ は移動壁面からの距離(m)である。本研



**Photo. 1** The photographs of test equipment. High-speed camera on the left, the Couette device on the right.

究で $n_r$ は可変であり、30 rpm, 45 rpm, 60 rpm, 120 rpm, 150 rpm, および200 rpmの6段階の回転数に対し実験を行った。

画像解析項目は、撮影されるフロックの投影面積 $A$ ( $\mu\text{m}^2$ )とし、式[3]を用いて円相当径を算出した。本試験装置のスケールは0.04122 mm/pxであり、 $46.5 \mu\text{m}$ 以上の粒子が測定対象であった。フロックは粒径分布を持つことから、統計的に扱い、円相当径 $d$ ( $\mu\text{m}$ )の累積頻度分布90%径(体積基準)を $D_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )とし、代表径とした。

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

## 3. 実験結果

### 3.1 撮影画像

**Photo. 2 (a) ~ (f)** に、30 rpm, 45 rpm, 60 rpm, 120 rpm, 150 rpm および200 rpmに回転数を変化させ撮影した画像を示す。それぞれの回転数において開始から2秒, 30秒, 60秒, 80秒, 140秒, 160秒, 300秒および600秒後の撮影画像を抽出した。撮影画像は、解析可能な8 bit形式に変換し、階調頻度を基に解析領域を設定した。前報に示したように、背景照明からの光の透過割合によって、フロックの輝度は変化した。輝度は明るさを表す物理量であり、フロック内部のカオリナイトは光を透過しにくいいため黒く映り、不溶性の水酸化アルミニウムから成るゲル状の部分は透明で、光を透過するため画像に映りにくい。したがって、フロック内部のカオリナイトが粗に存在するとフロックは薄い灰色に映り、密に存在すると黒く映る。こういったフロックの密度変化は、フロックの輝度(明るさ)から推察できる。本研究では、試験開始直後である2秒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、いずれの条件においても、画像解析には明確に検知されなかった。回転を継続すると、薄い灰色の輪郭の不明瞭なフロックが形成しはじめ(例;**Photo. 2 (a)** 60 s, **Photo. 2 (b)** 30 s, **Photo. 2 (c)** 60 s等)フロックが成長し、大きくかさばったバルキーフロックが複数存在していることが確認できた(例;**Photo. 2 (d)** 140 s, **Photo. 2 (e)** 60 s等)。さらに回転を継続すると、バルキーフロックは消滅し、破壊して微細化するものと、周囲の微細なフロックを取り込んで密に構造変化(再配列)していくものの両方が存在した(例;**Photo. 2 (c)** 300 s, **Photo. 2 (f)** 80 s等)。

### 3.2 $D_{90}$ と $GT$ 値の関係

**Photo. 2 (a)**の画像解析結果から得られた $D_{90}$ と $GT$ 値の両対数プロットを**Fig. 1 (a)**に、**Photo. 2**

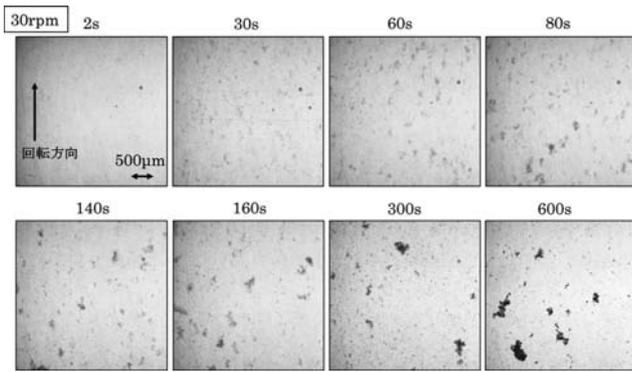


Photo. 2 (a) Images taken of the floc under the test conditions of 30 rpm rotation speed.

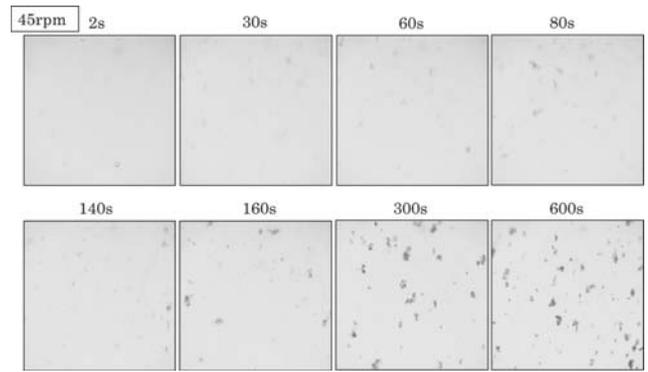


Photo. 2 (b) Images taken of the floc under the test conditions of 45 rpm rotation speed.

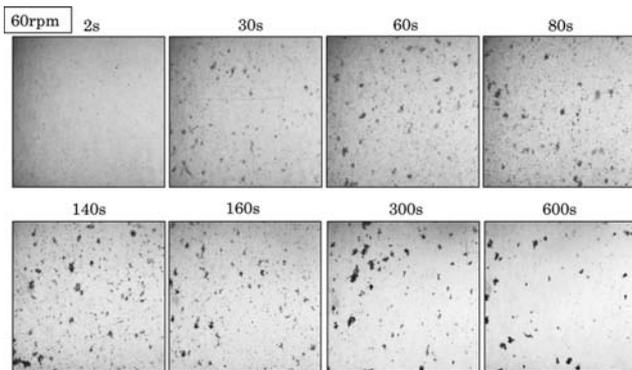


Photo. 2 (c) Images taken of the floc under the test conditions of 60 rpm rotation speed.

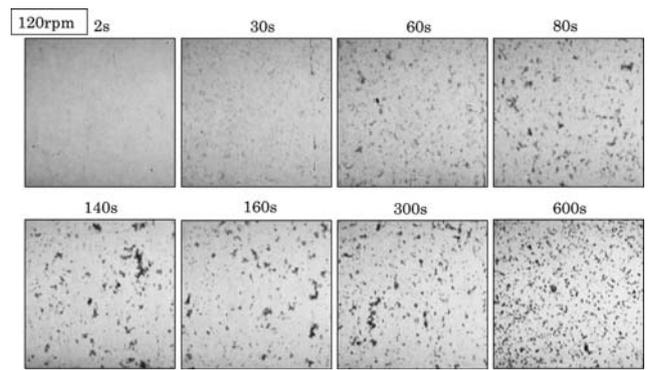


Photo. 2 (d) Images taken of the floc under the test conditions of 120 rpm rotation speed.

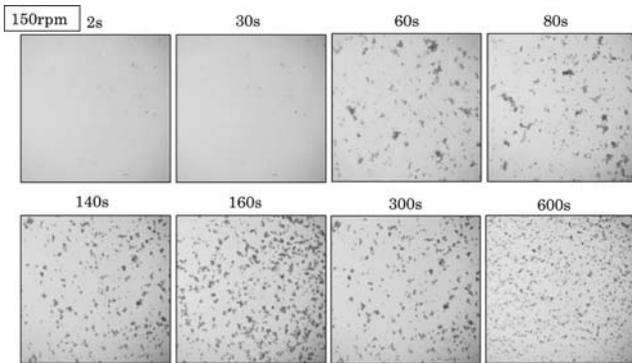


Photo. 2 (e) Images taken of the floc under the test conditions of 150 rpm rotation speed.

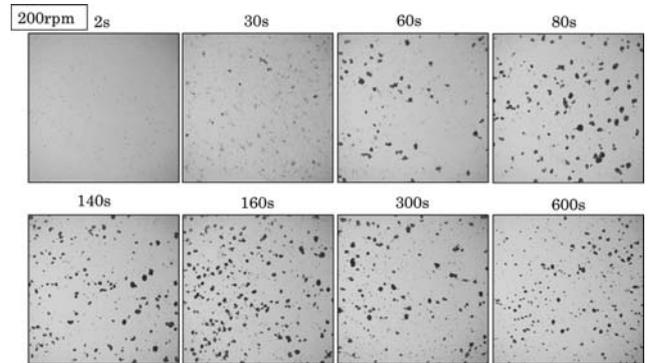
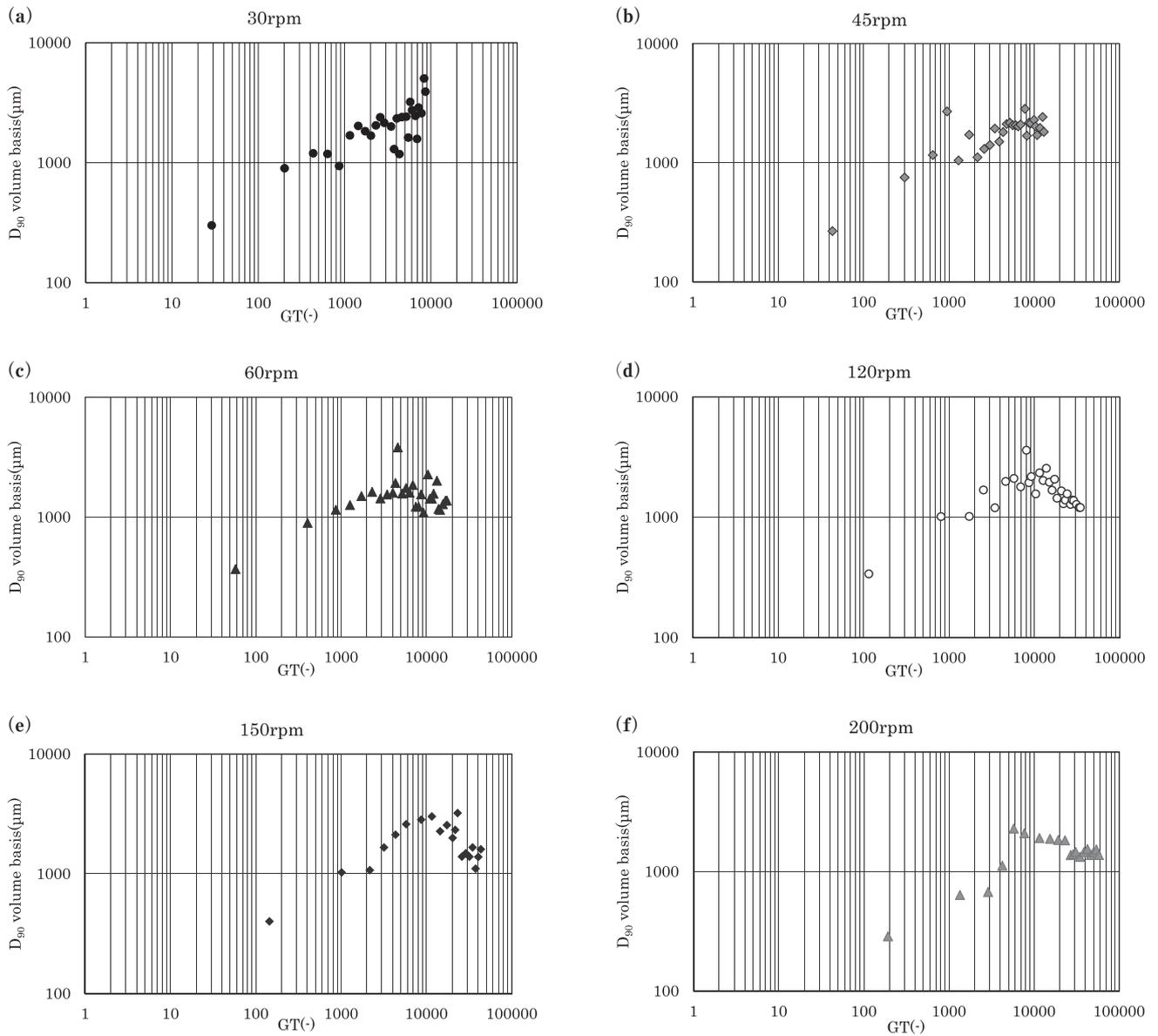


Photo. 2 (f) Images taken of the floc under the test conditions of 200 rpm rotation speed.

(b) の結果を Fig. 1 (b) に、Photo. 2 (c) の結果を Fig. 1 (c) に、Photo. 2 (d) の結果を Fig. 1 (d) に、Photo. 2 (f) の結果を Fig. 1 (f) に示す。本試験は回転数条件ごとに  $G$  値は一定であるため、 $GT$  値の増加は間接的に時間経過を表している。Fig. 1 (a) の 30 rpm の低速回転域では、 $D_{90}$  は  $GT$  値に対して単調増加していた。これは、 $D_{90}$  は  $GT$  値に対してべき乗に比例して増加（成長）していたことを表す。Fig. 1 (b) の 45 rpm や Fig. 1 (c) の 60 rpm の中速回転域では、 $GT$  値 8,000 付近までは  $D_{90}$  はべき乗の比例関係で成長しているが、 $GT$  値 8,000 以降は、 $D_{90}$  は  $GT$  値に対して減少傾向にあった。これは、時間経過と

もに  $GT$  値が増加していくと、ある時点でフロックが成長から破壊傾向に転じたことを表す。Fig. 1 (d) の 120 rpm、Fig. 1 (e) の 150 rpm、Fig. 1 (f) の 200 rpm の高速回転域では、中速回転域と同様に  $GT$  値 8,000 付近までは  $D_{90}$  は  $GT$  値のべき乗の比例関係で成長し、 $GT$  値 8,000 以降は減少傾向に転じた。このように、いずれの条件においても、 $D_{90}$  は  $GT$  値のべき乗の比例関係で成長し、Fig. 1 (a) の 30 rpm を除く 5 条件では、 $GT$  値 8,000 付近を境に破壊傾向に転じた。30 rpm は  $G$  値が小さいため、試験時間内に、他の条件において変化が見られた  $GT$  値 8,000 まで達しなかった。30 rpm については、さらに長時間の試



**Fig. 1** Relationship between  $D_{90}$  and  $GT$  value with both logarithmic plots. Figures of (a)~(f) represent results under the following six rpm conditions; 30 rpm, 45 rpm, 60 rpm, 120 rpm, 150 rpm and 200 rpm.

験が必要であることが分かった。整理すると、せん断力一定の条件下でも、フロックは成長と破壊をし、フロックが最大径に達するまでの成長領域（領域①）と、破壊と再配列が卓越する破壊領域（領域②）は、概ね  $GT$  値 8,000 付近の回転数条件ごとに異なるある  $GT$  値によって区別された。

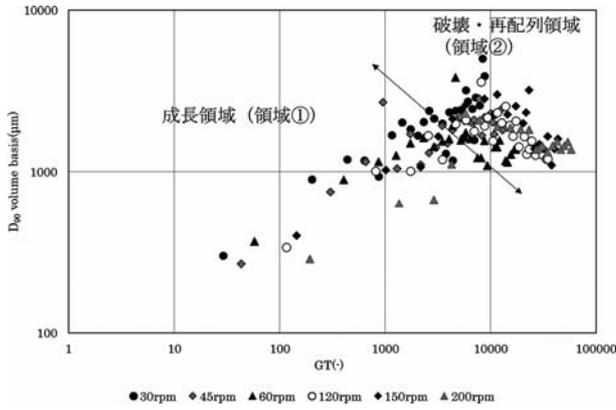
#### 4. 考 察

**Fig. 2** に **Fig. 1(a)~(f)** に示した結果を総じて重ね合わせたグラフを示す。この図に示したように、回転数によらず、凝集初期からフロックが最大径に達するまでのフロック構造成長領域（領域①）、と、最大径に達した後、破壊と再配列が卓越して生じる領域（領域②）に大別されることが確認できる。この事象は、フロックに加わる外力であるせん断力が一定の条

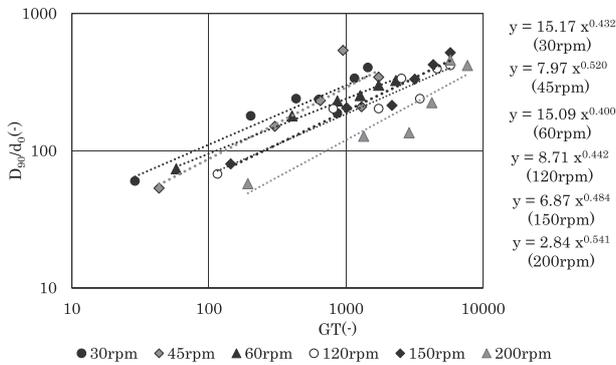
件下で、時間とともに成長から破壊へと、支配的な物理現象が変化している点で重要である。ここで、領域①と領域②の現象を区別し、特に領域①に主眼をおいて考察をするため、その両者の境界となる  $GT$  値を臨界  $GT$  値と定義する。 $D_{90}$  は  $GT$  値に対して、領域①では増加傾向にあり、領域②では、減少傾向に転じる。これは、グラフからも明らかであり、成長から破壊へと物理的現象が転移していることを示しているため、臨界  $GT$  値という表現とした。

##### 4.1 凝集初期における $D_{90}$ と $GT$ 値の関係

**Fig. 1(a)~(f)** に示した結果について、領域①の初期に相当する、試験開始から 80 秒間の  $D_{90}$  と  $GT$  値の両対数関係を **Fig. 3** に整理する。縦軸は、 $D_{90}/d_0$  とし、一次粒子径  $d_0$  は、カオリナイトの中心粒径とした。回転数条件ごとに測定上のばらつきはあるもの



**Fig. 2** Log plots of  $D_{90}/d_0$  and  $GT$  value at the very early stages of flocculation. The slopes of the  $D_{90}/d_0$  and  $GT$  value coincide around the 0.5<sup>th</sup> power. The relationship line is parallel shifted to the right for higher rpm. Fig. 2 graph summarizing multiple results in Fig. 1. After a critical  $GT$  value, the region is largely divided into a growth stage (region 1) and a breakup/rearrangement stage (region 2). In region 1, the relationship is linear; in region 2, the relationship is not clear.



**Fig. 3** Log plots of  $D_{90}/d_0$  and  $GT$  value at the very early stages of flocculation. The slopes of the  $D_{90}/d_0$  and  $GT$  value coincide around the 0.5<sup>th</sup> power. The relationship line is parallel shifted to the right for higher rpm.

の、 $D_{90}$ は $GT$ 値の0.40~0.54乗に比例しており、概ね0.5乗に比例すると考えられる。ここで得られた $D_{90} \propto GT^{0.5}$ の関係について、考察を加える。

#### 4.2 フロックのフラクタル次元を組み込んだ凝集速度式の提案

凝集初期における総粒子数とフロック数の関係に着眼し、 $D_{90}$ が $GT$ 値の0.5乗で表される点について、フロックのフラクタル構造を仮定して凝集速度を考察する。説明を加えると、フラクタル次元 $D$ (-)は、フロックの構造を特徴付ける値である。フロックの成長(構造の発達)は、 $D$ を含むスケーリング則と呼ばれる一定の規則性を有しており<sup>7)</sup>、フロックが成長すると同時に、フロック密度はフロック径に対してべき乗の関係で減少する特徴を持つ。流れ場の凝集速度は、凝集の初期において、 $N$ を総粒子数、 $G$ を速度勾配(本報での攪拌強度)、 $\alpha$ を衝突機構を反映する補正係数とすれば、

$$\frac{dN}{dt} = -\alpha GN \quad \dots \text{式}[5]$$

と近似的に表現することができる<sup>8)</sup>。 $N_0$ は総粒子数の初期値、経過時間は $t=T$ と置くことができるので、総粒子(フロック)数に対し

$$\frac{N}{N_0} = \exp(-GT\alpha) \quad \dots \text{式}[6]$$

となる。一方、フロックを構成する平均の粒子数を $i$ 、一次粒子の径を $d_0$ とすると、

$$i = \left(\frac{D_{90}}{d_0}\right)^D = \frac{N_0}{N} \quad \dots \text{式}[7]$$

となる<sup>8)</sup>。式[6]、[7]より、線形近似を用い、式[8]のように表せる。

$$\left(\frac{D_{90}}{d_0}\right)^D = \exp(GT\alpha) \doteq 1 + GT\alpha \quad \dots \text{式}[8]$$

$GT\alpha$ が1に対して十分大きいとすれば式[8]は、

$$\left(\frac{D_{90}}{d_0}\right)^D \doteq GT\alpha \quad \dots \text{式}[9]$$

となる。両辺の対数をとると、近似的に

$$\log\left(\frac{D_{90}}{d_0}\right) = \frac{1}{D} \log GT + \frac{1}{D} \log \alpha \quad \dots \text{式}[10]$$

が得られる。Meakin<sup>9)</sup>は、微細フロックが衝突する時、微細フロック同士の接合点が有限であるため完全には固定されず、微細フロック間が再配列していく機構がフロックの構造形成に寄与することを報告した。さらに足立ら<sup>10-12)</sup>は、微細フロックの集合体であるクラスター同士の接触点が1点の時はフラクタル次元 $D$ が1.8で安定化せず、構造を維持できないとした。クラスター同士の接触点が2点、3点と増加することにより接合強度が増し、構造が安定化することと、 $D$ は1.8から2.1程度に増加することを報告した。また、ポリスチレンラテックスとKClの凝集フロックと、アルミニウム塩で凝集したカオリナイトフロックの沈降速度の実験結果から求めた $D$ は、いずれも1.8~2.3の値をとった<sup>11)</sup>。このことから、式[10]において $D=2.0$ を仮定し、定数項を $C_\alpha$ とすると、式[11]のようになる。

$$\log\left(\frac{D_{90}}{d_0}\right) = \frac{1}{2} \log GT + C_\alpha \quad \dots \text{式}[11]$$

凝集初期に限られるが、**Fig. 3**から得られた $D_{90} \propto GT^{0.5}$ の関係性は式[11]を満たしており、カオリナイトとPAClの凝集において、せん断力が一定の条

件下でもスケーリング則に沿うフロック形成がなされたと考えられる。

### 4.3 凝集初期における $GT$ 値説の検討

Camp<sup>1)</sup>によれば、一般的な  $G$  値説は、 $G$  値が凝集の進行を支配的に決めているという説であり、 $GT$  値説<sup>2,3)</sup>は、 $GT$  値が同じならば凝集の進行が等しくなることを提唱している。本研究においては、領域①の  $D_{90}$  と  $GT$  値のべき乗に比例する関係性は、いずれの回転数条件においても確認されているものの、同一の  $GT$  値に対する  $D_{90}$  の値は、回転数条件ごとに異なっている。さらに Fig. 1 (a) ~ (f) の結果においても、低速回転域は、高速回転域よりも臨界  $GT$  値が大きくなる傾向があり、 $GT$  値説に従わない現象が表れている。これらの  $D_{90}$  および臨界  $GT$  値が、同一の  $GT$  値においても回転数条件によって変化する現象を、以下のように考察する。前出の Fig. 3 において、30~200 rpm と回転数が増える（せん断力が大きくなる）につれて、 $D_{90}$  と  $GT$  値の関係は、0.5 乗のべき乗を保ったまま右方向に平行移動（パラレルシフト）していく。式[11]の定数項  $C_\alpha$  は、回転数に応じて異なる定数であり、パラレルシフトを表している。このように、 $GT$  値に対して  $D_{90}$  の値が一意に定まらないのは、せん断力 ( $G$  値) がフロックの成長を阻害しているためと考えられる。その阻害は、接近衝突するフロック間の流体力学的相互作用による衝突確率の低減と、衝突し凝集したフロックが形状を維持できずに破壊することの2点が挙げられる。古典的な流れ場の凝集速度論では、凝集速度はフロック径の3乗に比例することが導かれている<sup>8)</sup>。これに従えば、フロック径の成長に伴い凝集速度は著しく増加するはずであるが、本研究の結果においてもそういった傾向は見られていない。そこで、微細なフロック同士の衝突による付着合一が不安定な体裁であれば、微細片同士の凝集に留まり、フロック径の著しい成長は進行しないと考えることができる。即ち領域①においても、成長と同時に一定の割合で破壊（フロックからの微細片のはがれ）が起こり、フロックの成長を阻害している。このような傾向は、 $G$  値が大きい条件でより顕著であったと考えられる。

### 4.4 領域①における $D_{90}$ と同一の $GT$ 値の比較検討

前節において、 $D_{90}$  の変化には、 $GT$  値だけでなく  $G$  値が影響している可能性を論じた。そこで、30 rpm, 45 rpm, 60 rpm, 120 rpm, 150 rpm および 200 rpm に相当する Fig. 1 (a) ~ (f) のデータを使用し、それぞれの回転数条件からの  $G$  値に対して、 $GT$  値 5870, 6069 および 8670 に該当する  $D_{90}$  を抽出した。例えば、 $GT$  値 5870 は、30 rpm の 400 秒後、6069 は 420 秒後、

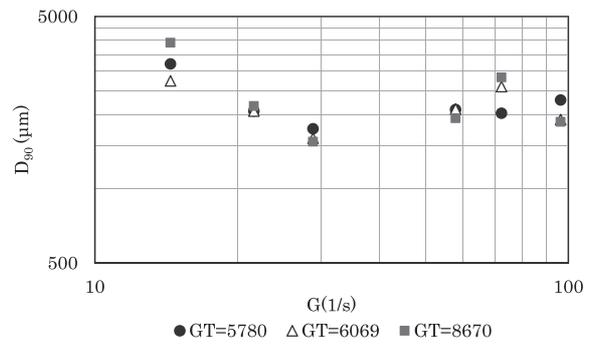


Fig. 4 For each rotation speed condition, the same  $GT$  values were extracted for different  $T$  (time), and the relationship between  $D_{90}$  and  $G$  values at that time was plotted in both logarithmic plots. In the low and medium speed rotation range, the relationship between  $D_{90}$  and  $G$  value decreases as a power, and the floc progressively destroys according to  $G$  value. In the high-speed range, the relationship between  $D_{90}$  and  $G$  value appears to remain unchanged, and the effect of  $G$  value is not clear.

8670 は 600 秒後に当たる。Fig. 4 に、それぞれ同一の  $GT$  値に対する  $D_{90}$  と  $G$  値の関係を示す。左から順に、30 rpm, 45 rpm, 60 rpm, 120 rpm, 150 rpm および 200 rpm のプロットである。図に示されるように、 $D_{90}$  と  $G$  値の関係は、30~60 rpm の3点と、120~200 rpm の3点で明らかに異なる傾向がある。30~60 rpm の低・中速回転域では、 $D_{90}$  は  $G$  値に対して明確な減少傾向があり、この範囲で  $G$  値を増加するとフロックの破壊が顕著に生じることを示している。また、この時に発生する破壊片はある程度大きさを保っており、再び凝集して大型のフロックに成長すると考えている。 $GT$  値 5870, 6069, および 8670 の違いは、時間経過であるが、低・中速回転域では時間による  $D_{90}$  の差異は明確でないことから、 $GT$  値よりも  $G$  値に依存して破壊が起きていると言える。一方で高速回転域である 120~200 rpm では、全く異なる傾向が示され、 $D_{90}$  は  $G$  値に対してやや増加、あるいはあまり変化していない。高速回転域では  $D_{90}$  の  $G$  値に対する依存性は小さいことが分かり、この原因を、フロックを構成する微細フロックの構造の違いにあると考えている。高速回転域では、せん断力が大きく、流体力学的相互作用の影響が強いため、微細片同士の物理的な衝突が促される。従って、凝集の初期段階から破壊による微細片が生じ、微細片はフロックの再配列に寄与する。せん断力によって破壊したフロックは、再び凝集しようとするものの、破壊する力も大きいため、 $D_{90}$  は極端に大きくはならない。このように、回転数 60 rpm である  $28.9 \text{ s}^{-1}$  と 120 rpm である  $57.8 \text{ s}^{-1}$  の間には遷移域があり、低・中速回転域では  $G$  値の影響が大きく、高速回転域では  $G$  値の影響は小さい。 $D_{90}$  の変化は、定性的には  $GT$  値で表されるものの、フロック構造が変化するため定量的には記述できていない。高速回転域の  $G$  値の影響については、 $D_{90}$

がやや増加するように見える点もあるため、今後データを増やした検討が必要である。

以上により、本研究ではフロックの構造形成において、 $GT$  値が一定の評価指標を与えることを説明した。一方、同一の  $GT$  値に対して  $D_{90}$  が回転数条件によって異なるなど、既往の  $GT$  値説に一部従わない関係性も得られた。これについては、既往の  $GT$  説においてはフロックの構造形成は考慮されていないためであり、既往の  $GT$  値説は、本測定で検知できない  $50\ \mu\text{m}$  以下のフロックのみが存在し、フロック構造がさほど発達していない、凝集の極めて初期の段階で有効と推察された。極めて初期の領域と、実験で対象とした領域①の間には一定の遷移が生じていると考えられ、今後検討すべき課題である。また、高速回転域の  $D_{90}$  と  $G$  値の関係性には明らかになっていない事象があるため、データ数を増やした検討が必要である。また、本研究で存在を明らかにした領域②に対しても、様々な角度から分析を行う。

## 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を画像撮影と画像解析によって把握することを目的に、外筒回転型のクエットデバイスにおいて、カオリナイト  $100\ \text{mg/L}$ 、 $\text{PACl}$   $50\ \text{mg/L}$ 、 $\text{pH}$   $7.0$  の試験水に対し、 $30\sim 200\ \text{rpm}$  に相当する  $0.0145\sim 0.0968\ \text{N/m}^2$  の6段階のせん断力を与える凝集試験を行った。結論を以下にまとめる。

- ・層流せん断流れ場において、フロック径 ( $D_{90}$ ) が増加し、最大径に達した後に、成長と破壊、再配列によってフロック径 ( $D_{90}$ ) が減少する様子が観察された。低速回転域 ( $30\ \text{rpm}$ ) ではせん断力が小さいため、試験時間においてフロックの破壊は明確ではなかったが、他の5条件について成長領域と破壊・再配列領域は明確に区別された。これは、せん断力一定の条件下であっても、成長と破壊の凝集プロセスは進行し、フロック構造が変化することを示している。
- ・本研究の回転数条件では、概ね  $GT$  値  $8,000$  付近で成長から破壊へ転じた。成長から破壊へ転じる  $GT$  値は、せん断力に応じて小さくなる傾向にあった。フロックの成長に限界があることを示しており、凝集の攪拌条件を定めるうえで有用な情報である。
- ・初期凝集の段階において、 $D_{90}$  は  $GT$  値の約  $0.5$  のべき乗に比例した。 $GT$  値説を定性的に表しており、フラクタル構造を仮定した凝集速度式の解析によれば、本研究のフロック構造は、一般的なスケーリング則で表される。
- ・ $D_{90}$  と  $GT$  値の関係は、せん断力に応じて右方向に

平行シフトしていた。 $GT$  値説に定量的には当てはまらない現象であるが、フロック構造の変化と、せん断力に応じて一定の割合でフロックの破壊（細片のはがれ）が生じるためと考えている。さらに、成長領域においても、フロックの成長と破壊が同時進行していることが示唆される結果である。

- ・ $D_{90}$  と  $G$  値の関係を整理すると、低・中速回転域では、 $D_{90}$  は  $G$  値に応じて明らかに減少し、 $G$  値の影響が大きい。高速回転域では、 $D_{90}$  は  $G$  値に対して減少せず、微増、あるいは大きさを維持していたことから、 $G$  値の影響は小さいと考えている。高速回転域では、凝集初期から生じている破壊と微細片の関与による再配列現象により、 $G$  値に対して強度のあるフロック形成がなされている可能性がある。 $G$  値、 $GT$  値によって、フロックの成長と破壊に関する支配的な現象が変化する点で重要であり、今後データを集めて議論する必要がある。

## 謝 辞

外筒回転型クエットデバイスは、科学研究費助成事業を受けて設計し、筑波大学研究基盤総合センター工務部門に協力を得て製作した装置を使用しました。

## 参 考 文 献

- 1) Camp, T. R.: Flocculation and Flocculation Basins, Transactions of the American Society of Civil Engineers, No. 2722, pp. 1-16 (1933)
- 2) Camp, T. R. and Stein, P. C.: Velocity Gradients and Internal Work in Fluid Motion, Journal of Boston Society of Civil Engineering, Vol. 30, pp. 219-237 (1943)
- 3) 楠田哲也：フロッ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)
- 4) 福田(早見)美意，毛受卓，出健志，内田竜朗，櫻井進，足立泰久：外筒回転型クエットデバイスで形成される一様なせん断流れ場におけるアルミニウムフロックの構造変化，環境システム計測制御学会誌 (EICA)，27巻，4号，pp. 82-90 (2023)
- 5) 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)
- 6) T. Ferreira and W. Rasband: ImageJ User Guide, IJ 1.46r: <https://imagej.nih.gov/ij/docs/guide/user-guide.pdf> (2012)
- 7) 高安秀樹：フラクタル，朝倉書店 (1986)
- 8) 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ッ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)
- 9) P. Meakin: Fractal Aggregates, Advances in Colloid and Interface Science, Vol. 28, pp. 249-331 (1988)
- 10) Y. Adachi: Dynamic aspects of coagulation and flocculation, Advances in Colloid and Interface Science, Vol. 56, pp. 1-31 (1995)
- 11) Y. Adachi and S. Ooi: Geometrical Structure of a Floc, Journal of Colloid and Interface Science, Vol. 135, Issue. 2, pp. 374-384

- (1990), [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(90\)90007-B](https://doi.org/10.1016/0021-9797(90)90007-B)
- 12) Y. Adachi and S. Ooi: Sediment Volume of Flocculated Material Studied Using Polystyrene Latex Spheres, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, Vol. 32, Issue. 1, pp. 45–50 (1999)  
<https://doi.org/10.1252/jcej.32.45>
- 13) M. Kobayashi, Y. Adachi and S. Ooi: Breakup of Fractal Floccs in a Turbulent Flow, *Langmuir*, Vol. 15, Issue. 13, pp. 4351–4356 (1999), <https://doi.org/10.1021/la980763o>
- 14) 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*, No. 297, pp. 979–987 (2019)

## Structural Change of Poly-aluminum Chloride and Kaolinite Floc in Several Laminar Shear Flows by the Couette Device

Mii Fukuda (Hayami)<sup>1)†</sup>, Takashi Menju<sup>1)</sup>, Takeshi Ide<sup>1)</sup>, Tatsuro Uchida<sup>2)</sup> and Yasuhisa Adachi<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup> Infrastructure Systems Research and Development Center, Toshiba Infrastructure Systems & Solutions Corporation

<sup>2)</sup> Energy Systems Research and Development Center, Toshiba Energy Systems & Solutions Corporation

<sup>3)</sup> 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](mailto:mii.fukuda@toshiba.co.jp)

### Abstract

To investigate the effect of shear force on the structural changes of floccs, the flocculation process of kaolinite-PACl was visualized in a laminar shear flow. The test equipment was a horizontal outer cylinder rotating Couette device, and the shear force in the gap of the double cylinder was controlled by the rotational speed. The trends in the representative diameter  $D_{90}$  of the floccs were organized as a function of the  $GT$  value (product of agitation intensity and time). As a result, a clear distinction was made in the high-speed rotation range between the floc growth stage and the breaking stage. Especially in the growth stage,  $D_{90} \propto GT^{0.5}$  was shown. This relationship can be explained by assuming a fractal structure in the conventional cohesive kinetic equation;  $D_{90}$  shifts in parallel while maintaining 0.5 power of the  $GT$  value, suggesting that floc fracture also occurs in the growth stage.

**Key words:** flocculation, floc structure, poly-aluminum chloride, laminar shear flow, image analysis