逆浸透法海水淡水化用中空糸モジュール内の物質移動[†]

岩橋英夫¹・岸 正弘^{2††}・宮武 修¹

¹ 九州大学大学院工学研究科 化学システム工学科専攻, 812-8251 福岡市東区箱崎 6-10-1

²(株) 機械化学研究所, 654-0012 神戸市須磨区飛松町 3-3-4

海水淡水化に多く用いられている中空糸型モジュールの海水流路内の物質移動について、その微小空間の海水流路を相似な平行平板間および円管内流路としてモデル化し、変数分離法を用いて、基礎方程式から速度分布の解析解および濃度分布の数値解を求めた。その結果、膜面における濃度分極比は、脱塩率および透過水体積流束と流路半幅の積を拡散係数で除した無次元透過水体積流束によって決まるが、前者の影響は小さく、後者とは直線関係となった。また、実用操作域では、濃度分極比は平均濃度の 1.01 以下で無視できることが明らかとなった。平行平板と円管のモデル間の差は殆どない。一方、既存の物質移動式はレイノルズ数の関数で、海水流路幅に比べてはるかに大きい濃度境界層厚さを与える。これは拡散抵抗と無関係な偏流などを誤認したものと思われる。これらの知見は、膜汚染現象の解明に有力な手段になると思われる。

緒 言

世界的な人口の増加と都市集中、生活様式の高度化、異常気象頻度の増加や工場の立地難から、海水から淡水を作る海水淡水化装置の建設が進み、最近 10 年間に造水容量は 57% 増加し、1998 年現在、日量約 1,300 万 m³ に達している。中でも逆浸透法による海水淡水化装置は、中東地域に多く設置されている蒸発法に比べ、エネルギー消費量が少ないことから、先進国を中心に採用が増え、全造水容量の 15% を占めるに至っている (Wangnick, 1998)。

しかし、一方では不適切な前処理、運転操作などによる障害に遭遇することもまだ多く、障害防止のための技術開発が必要である。中でも、海水中の微粒子が膜面に付着して生じる付着層内の通水抵抗と拡散抵抗の増加、および海水流路の部分的閉塞による偏流の発生、これらに付随する性能劣化の防止は重要な課題である。この課題に対処するためには、モジュール (膜収納部分) の汚染状況を判定する上で基準となる、非汚染状態下におけるモジュール内部の物質移動の解析が必要である。

本研究で対象としたのは、逆浸透法海水淡水化に 65% 使用されている中空糸型モジュールである。このモジュールの海水流路内物質移動について、Dandavati *et al.* (1975), Hanbury *et al.* (1981) および Rautenbach *et al.* (1987) は、拡散抵抗による濃度分極を無視して数値解析を行い、モジュールの透過水量および透過水質を求めているが、塩濃度が増加するにつれて、解析値と実測値の偏差が大きくなり、海水淡水化用モジュールに対しては適用できない (Soltanieh *et al.*, 1982)。

この偏差の要因は拡散抵抗による濃度分極を無視したことにあるとして、Sekino *et al.* (1991) は、濃度分極の存在を前提に市販の中空糸型モジュールの性能測定結果から、物質移動係数に関する経験式を提出している。しかし、代表的な操作条件下において、この経験式を用いて濃度境界層厚さを算定してみると 0.5~1 mm 程度となり、海水流路平均半幅 0.03~0.07 mm に比べてはるかに大きくなるという矛盾がある (3.2 節参照)。この経験式を用

いて算定される物質移動係数は、モジュール内海水の不均一な流れなどの影響も加わった見かけの物質移動係数と解釈せざるを得ない。したがって、非汚染状態下において濃度分極がどの程度存在するのかについては、依然として明らかにされていないのが実情である。

本研究では、非汚染状態下における中空糸型モジュールの海水流路の濃度分極を定量的に求めるため、中空糸束の微小空間構造を考慮して海水流路をモデル化して基礎方程式をたて、流路内の速度分布の解析解および濃度分布の数値解を求める。さらに、求めた濃度分極比を、既存の物質移動係数と対比させて考察する。

1. 海水流路モデル

中空糸型モジュールは Fig. 1(a) に示す中空糸を重ね束ねた積層構造となっているので、Fig. 1(b) に示す直方体の単位セルを考えると、単位セルの体積 v_c 、単位セル内の膜面積 S_c および海水流路の空隙率 ε は、それぞれ次式で表される。

$$v_c = d_o a b \quad (1)$$

$$S_c = \pi d_o b \quad (2)$$

$$\varepsilon = 1 - \frac{(\pi d_o^2/4) b}{d_o a b} = 1 - \frac{\pi d_o}{4a} \quad (3)$$

Eqs. (1)~(3) より、海水流路体積と膜面積の比は、

$$\frac{\varepsilon v_c}{S_c} = \frac{\varepsilon a}{\pi} = \frac{\varepsilon d_o}{4(1-\varepsilon)} \quad (4)$$

実際の海水流路は拡大・縮小を伴う複雑な形状を有し、それによる混合作用で濃度分極は抑えられるが、濃度分極の最大値を見積るため、海水流路体積と膜面積の比が Eq. (4) と同じ値を有する単純な平行平板間および円管内の海水流路モデルで近似する。

Fig. 2(a), (b) に示す流路中心軸から膜面までの距離 y_0 , r_0 は、それぞれ次式で表わされる。

$$y_0 = \frac{\varepsilon v_c}{S_c} = \frac{\varepsilon d_o}{4(1-\varepsilon)} \quad (5)$$

$$r_0 = \frac{2\varepsilon v_c}{S_c} = \frac{\varepsilon d_o}{2(1-\varepsilon)} \quad (6)$$

この両モデルの妥当性に関しては、解析結果から考察する必要がある。3.3 節で後述する。

[†] 2000 年 4 月 12 日受理

^{††} mcrikb@diانet.or.jp

(a) Structure of hollow fiber multilayer

(b) Unit cell overlook

Fig. 1 Structure of hollow fiber bundle

Fig. 2 Analytical system and coordinates

2. 基礎方程式および数値解析法

2.1 基礎方程式（平行平板間海水流路モデル）

Fig. 2(a)に示す平行平板間流路に対して、連続の式、運動方程式および拡散方程式は、それぞれ次式で表される。

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (7)$$

$$-\frac{dp}{dx} + \mu \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} = 0 \quad (8)$$

$$u \frac{\partial c}{\partial x} + v \frac{\partial c}{\partial y} = D \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \quad (9)$$

ここで、 u は x 方向速度成分、 v は y 方向速度成分、 p は海水圧力、 c は海水塩濃度、 μ は海水粘度、 D は拡散係数である。

また、膜面および流路中心軸上における境界条件は、

$$(\partial u / \partial y)_{y=0} = 0 \quad (10)$$

$$(u)_{y=y_0} = 0 \quad (11)$$

$$(v)_{y=0} = 0 \quad (12)$$

$$(v)_{y=y_0} = J_v \quad (13)$$

$$(\partial c / \partial y)_{y=0} = 0 \quad (14)$$

$$D(\partial c / \partial y)_{y=y_0} = J_v(c)_{y=y_0} - J_s \quad (15)$$

ここで、 J_v は透過水の体積流束、 J_s は透過塩の質量流束である。

いずれも y のみの関数とした無次元速度分布関数 U 、 V 、無次元塩濃度分布関数 C を用い、 u 、 v 、 c を、 x 、 y の変数分離の形で表わすと、

$$u(x, y) = \bar{u}(x) U(y) \quad (16)$$

$$v(x, y) = J_v(x) V(y) \quad (17)$$

$$c(x, y) = \bar{c}(x) C(y) \quad (18)$$

ここで、 $\bar{u}$ は x 方向の平均速度、 $\bar{c}$ は平均濃度で、いずれも x の

みの関数となり、それぞれ次式で表わされる。

$$\bar{u} = \frac{1}{y_0} \int_0^{y_0} u dy \quad (19)$$

$$\bar{c} = \frac{1}{y_0 \bar{u}} \int_0^{y_0} c u dy \quad (20)$$

Eqs. (16)～(18) を Eqs. (7)～(15) に代入すると、次の常微分方程式および境界条件が得られる。

$$\frac{dV}{dy} = -\frac{1}{J_v} \frac{d\bar{u}}{dx} U = -g(x) U \quad (21)$$

$$\frac{d^2 U}{dy^2} = \frac{1}{\mu \bar{u}} \frac{dp}{dx} = f(x) \quad (22)$$

$$C U \frac{\bar{u}}{c} \frac{d\bar{c}}{dx} + J_v V \frac{dC}{dy} = D \frac{d^2 C}{dy^2} \quad (23)$$

$$(dU/dy)_{y=0} = 0 \quad (24)$$

$$(U)_{y=y_0} = 0 \quad (25)$$

$$(V)_{y=0} = 0 \quad (26)$$

$$(V)_{y=y_0} = 1 \quad (27)$$

$$(dC/dy)_{y=0} = 0 \quad (28)$$

$$D\bar{c}(dC/dy)_{y=y_0} = J_v \bar{c}(C)_{y=y_0} - J_s \quad (29)$$

Eq. (22) を境界条件 Eqs. (24)、(25) のもとで積分し、Eq. (19) を満足するように積分定数と未知関数 $f(x)$ を定めると、次式が得られる（Appendix 参照）。

$$U = \frac{3}{2} \left\{ 1 - \left(\frac{y}{y_0} \right)^2 \right\} \quad (30)$$

Eq. (30) を Eq. (21) に代入し、境界条件 Eq. (26) のもとで積分し、Eq. (27) を満足するように積分定数と未知関数 $g(x)$ を定めると（Appendix 参照）、

$$V = \frac{3}{2} \frac{y}{y_0} \left\{ 1 - \frac{1}{3} \left(\frac{y}{y_0} \right)^2 \right\} \quad (31)$$

一方、 x 方向平均速度 $\bar{u}$ 、平均濃度 $\bar{c}$ と透過水の体積流束 J_v 、透過塩の質量流束 J_s の関係は、海水中の水および塩の物質収支より、

$$\frac{d(\rho \bar{u})}{dx} = -\frac{\rho_w J_v}{y_0} \quad (32)$$

$$\frac{d(\bar{c} \bar{u})}{dx} = \bar{u} \frac{d\bar{c}}{dx} + \bar{c} \frac{d\bar{u}}{dx} = -\frac{J_s}{y_0} \quad (33)$$

ここで ρ 、 ρ_w は、それぞれ、海水、水の密度である。

ρ は、原海水温度 7～40℃ の領域では、塩濃度 c の 1 次式、

$$\rho = \rho_w + 0.700 c \quad (34)$$

で表わされる。この式は文献値（Soc. of Sea Water Science, Japan 1974）と ±0.5% で一致する。

Eq. (32) に Eq. (34) を代入すると、

$$\frac{d(\rho \bar{u})}{dx} = \rho_w \frac{d\bar{u}}{dx} + 0.700 \frac{d(\bar{c} \bar{u})}{dx} = -\frac{\rho_w J_v}{y_0} \quad (35)$$

Eq. (35) に Eq. (33) を代入すると、次式が得られる。

$$\frac{d\bar{u}}{dx} = -\frac{J_v}{y_0} \left(1 - \frac{0.700}{\rho_w} \frac{J_s}{J_v} \right) \quad (36)$$

(J_s/J_v) は透過水塩濃度で通常 1 kg/m³ 以下、 ρ_w は約 10³ kg/m³ なので、Eq. (36) 右辺の括弧内第 2 項は第 1 項に比べて無視でき、

$$d\bar{u}/dx = -J_v/y_0 \quad (37)$$

Eq. (37) を Eq. (33) に代入すると、次式が得られる。

$$\bar{u} d\bar{c}/dx = \eta J_v \bar{c}/y_0 \quad (38)$$

ここで、 η は次式で表わされる膜の脱塩率である。

$$\eta = 1 - J_s/(J_v \bar{c}) \quad (39)$$

Eq. (39) を Eq. (29) に代入して $\bar{c}$ を消去すると、

$$1-\eta=(C)_{y=y_0}-\frac{D}{J_v}\left(\frac{dC}{dy}\right)_{y=y_0} \quad (40)$$

また, Eq. (38) を Eq. (23) に代入すると, 次式が得られる.

$$\frac{\eta J_v}{y_0}CU+J_vV\frac{dC}{dy}=D\frac{d^2C}{dy^2} \quad (41)$$

y 方向無次元座標 Y および無次元透過水体积流束 F_p ,

$$Y=y/y_0 \quad (42)$$

$$F_p=J_v y_0/D \quad (43)$$

を導入し, Eq. (41), U, V の解析解 Eqs. (30), (31), 境界条件 Eqs. (28), (40) および平均濃度の表示式 Eq. (20) を無次元化すると,

$$\eta F_p C U+F_p V \frac{dC}{dY}=\frac{d^2 C}{dY^2} \quad (44)$$

$$U=(3/2)(1-Y^2) \quad (45)$$

$$V=(3/2)U\{1-(Y^2/3)\} \quad (46)$$

$$(dC/dY)_{Y=0}=0 \quad (47)$$

$$1-\eta=(C)_{Y=1}-\frac{1}{F_p}\left(\frac{dC}{dY}\right)_{Y=1} \quad (48)$$

$$\int_0^1 C U dY=1 \quad (49)$$

2.2 基礎方程式 (円管内海水流路モデル)

Fig. 2(b) に示す円管内流路に対して連続の式, 運動方程式および拡散方程式は, それぞれ次式で表される.

$$\frac{\partial u}{\partial x}+\frac{1}{r} \frac{\partial(r v)}{\partial r}=0 \quad (50)$$

$$-\frac{d p}{d x}+\mu \frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{\partial u}{\partial r}\right)=0 \quad (52)$$

$$u \frac{\partial c}{\partial x}+v \frac{\partial c}{\partial r}=\frac{D}{r} \frac{\partial}{\partial r}\left(r \frac{\partial c}{\partial r}\right) \quad (52)$$

ここで, u は x 方向速度成分, v は r 方向速度成分である.

また境界条件は,

$$(\partial u / \partial r)_{r=0}=0 \quad (53)$$

$$(u)_{r=r_0}=0 \quad (54)$$

$$(v)_{r=0}=0 \quad (55)$$

$$(v)_{r=r_0}=J_v \quad (56)$$

$$(\partial c / \partial r)_{r=0}=0 \quad (57)$$

$$D(\partial c / \partial r)_{r=r_0}=J_v(c)_{r=r_0}-J_s \quad (58)$$

r 方向無次元座標 R および無次元透過水体积流束 F_r ,

$$R=r / r_0 \quad (59)$$

$$F_r=J_v r_0 / D \quad (60)$$

を導入し, 平行平板間流路モデルの場合と同様な導出過程を経て, Eqs. (44)~(49) に対応する次式が得られる.

$$2 F_r \eta C U+F_r V \frac{d C}{d R}=\frac{D}{R}\left\{\frac{d}{d R}\left(R \frac{d C}{d R}\right)\right\} \quad (61)$$

$$U=2\left(1-R^2\right) \quad (62)$$

$$V=2 R\left(1-R^2 / 2\right) \quad (63)$$

$$(d C / d R)_{R=0}=0 \quad (64)$$

$$1-\eta=(C)_{R=1}-\frac{1}{F_r}\left(\frac{d C}{d R}\right)_{R=1} \quad (65)$$

$$\int_0^1 C U R d R=1 / 2 \quad (66)$$

2.3 数値解析法

海水淡水化に使用する膜の脱塩率 η は膜の種類によって 0.9~0.99 のものがあるが, 個々の膜に対しては 0.02 以下の狭い範囲に変化するだけなので (Toyobo Co., Ltd., 1999), 定数と見なせる. したがって, 平行平板間海水流路モデルの場合には, U を Eq. (45) から, V を Eq. (46) から算出し, 境界条件 Eqs

Fig. 3 Velocity and salt concentration distribution functions (Parallel plate channel)

(47), (48), 拘束条件 Eq. (49) のもとで, Eq. (44) を差分法による数値解析を行えば, C の数値解を求めることができ, 膜面における濃度分極比, すなわち膜面塩濃度 c_m と $\bar{c}$ の比 $(C)_{Y=1}$ も同時に求まる.

また円管内海水流路モデルの場合には, Eqs. (61)~(66) を数値解析すれば, C を求めることができる.

東洋紡績 (株) の中空糸型モジュールの中空糸は, 外径 $d_o=163 \times 10^{-6} \text{ m}$, 空隙率 $\varepsilon=0.45$ であるので, Eq. (5) より $y_0=33 \times 10^{-6} \text{ m}$, Eq. (6) より $r_0=67 \times 10^{-6} \text{ m}$ となる. また透過水の体積流束は平均で $J_v=25 \times 10^{-6} \text{ m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ である. 拡散係数として 25°C における NaCl 溶液中の $D=1.5 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ を採用すると, 無次元透過水体积流束に関しては Eq. (43) から $F_p=0.0064$, Eq. (60) から $F_r=0.0128$ が得られる. そこで, F_p, F_r を 0.005~0.050 の間で変化させ, また, 脱塩率 η を 0.9~1.0 と変化させて, 数値解析を行った.

数値解析は有限差分法によって行い, $y=0 \sim y_0, r=0 \sim r_0$ の領域に 100 個の等間隔格子を設け, 0.1% 以下の十分な数値解析精度を確保した.

3. 数値解析結果および考察

3.1 濃度分布関数および濃度分極比

濃度分布関数 C と無次元座標 Y の関係を, 平行平板間流路モデルの場合について Fig. 3 に, 円管内海水流路モデルの場合について Fig. 4 に示した. また, U, V の解析解もそれらの図に併示した. 流路内の塩濃度は流路中心軸から膜面に向けて単調に上昇しており, 流路内の濃度変化は, 無次元透過水体积流束 F_p, F_r が

Fig. 4 Velocity and salt concentration distribution functions (Circular tube channel)

Fig. 5 Concentration polarization

増加するにつれて増大する。

濃度分極比 $(C)_{Y=1}$, $(C)_{R=1}$ と F_P , F_T の関係を Fig. 5 に示した。 $(C)_{Y=1}$, $(C)_{R=1}$ は、それぞれ F_P , F_T と直線関係になり、脱塩率 η の影響は比較的小さい。脱塩率 $\eta=0.994$ (Toyobo Co., Ltd., 1999) の場合について、無次元透過水体積流束 $F(=F_P, F_T)$ と濃度分極比 $c_m/\bar{c} (= (C)_{Y=1}, (C)_{R=1})$ の関係を Fig. 6 に示し

Fig. 6 Comparison of parallel plate and circular tube channels

た。両海水流路モデル間の差は小さく、 F と $c_m/\bar{c}$ の関係においては、モデルを区別せずに取扱っても良い。

前節で試算した中空糸モジュールに対する無次元透過水体積流束 $F_P=0.0064$, $F_T=0.0128$ の場合、それぞれ $c_m/\bar{c}=1.0036$, $c_m/\bar{c}=1.0071$ となり、濃度分極が存在しない場合の1に極めて近く、濃度分極は無視できる。実際のモジュール内海水流路は均一断面でなく、拡大・縮小を繰り返しているため、それによる混合作用で濃度分極は計算値より更に小さくなると考えられる。したがって、海水淡水化に用いる中空糸型モジュールでは、非汚染状態下において、濃度分極を考慮する必要は全くない。

また、膜表面が汚染され付着層が生じた場合は、付着層による濃度分極のみを考えれば良いので、付着層の厚さと拡散係数から F を計算し、Fig. 6 から濃度分極比を容易に求めることができる。この知見は、今後膜汚染の障害評価やその防止法の研究に非常に有用である。

3.2 物質移動係数に関する従来の経験式との対比

膜面と半無限液の間の拡散抵抗に起因する濃度分極については、濃度境界層の概念に基づき、次式が示されている (Kimura *et al.* 1990)。

$$c_m/\bar{c} = \exp(J_V/k) = \exp(J_V\delta/D) \quad (67)$$

ここで、 δ は濃度境界層厚さ、 k は次式で表される物質移動係数である。

$$k = (J_V c_m - J_S)/(c_m - \bar{c}) \quad (68)$$

Sekino *et al.* (1991) は、Eqs. (67), (68) を用い東洋紡績 (株) 製の中空糸型モジュールを用いた実験から、シャワーウッド数 Sh に関する次の経験式を提出している。

$$Sh = kd_o/D = 0.048 Re^{0.6} Sc^{0.33} \quad (69)$$

ここで、 Re , Sc は、それぞれ次式で定義したレイノズ数、シュミット数である。

$$Re = d_o \bar{u} \rho / \mu \quad (70)$$

$$Sc = \mu / (\rho D) \quad (71)$$

カタログ値 (Toyobo Co., Ltd., 1999) から求まる実用操作域における $\bar{u}$ は $0.001 \sim 0.003$ m/s である。25°C における海水の物性値を使用し、Eqs. (70), (71) から Re および Sc を求めると、 $Re=0.16 \sim 0.48$, $Sc=690$ となり、これらを使用して Eqs. (67), (69) から $c_m/\bar{c}=1.1 \sim 1.2$, $\delta=0.48 \sim 0.97 \times 10^{-3}$ m が得られる。この濃度境界層厚さ δ は、2.3 節で求めた $y_0=33 \times 10^{-6}$ m および $r_0=67 \times 10^{-6}$ m の 7~30 倍となり、濃度境界層厚さとしては不合理である。これは半無限液に対する濃度分極理論の適用によるものと考えられる。

一方、Cussler (1997) は、流路軸方向距離 x と流路内平均速度 $\bar{u}$ の関数として、平板の濃度境界層厚さ δ に関する式を提出して

Fig. 7 Relation between average diffusion distance ratio and angle numbers of channel cross-section

いる。この式に上記の諸数値を代入して計算すると、 $\bar{u}=0.001\sim 0.003$ m/s であれば $x=17\sim 30\times 10^{-6}$ m の極短い位置で、 δ は 2.3 節に記述した平行平板間の中心軸から膜面までの距離 $y_0=33\times 10^{-6}$ m に達する。したがって、 x がこれ以上の領域、すなわち海水流路のはば全域において、両側から発達した濃度境界層は中心軸に到達しており、軸方向速度に関係なく $\delta=y_0$ となり、 δ は一定となる。このことから、濃度分極を支配する因子は、濃度境界層厚さ δ ではなく空間の拡散距離を代表する y_0 や r_0 であり、これらの数値から求める F が拡散現象を支配する。このことは Fig. 5 に示した本数値解析結果でも検証されている。

Eqs. (67), (69) から求まる濃度分極比 $c_m/\bar{c}$ が Re と関係しているのは、 Re が小さくなるにつれてモジュール内海水の流れが不均一になることに起因していると考えられる。したがって、今後のモジュール性能の向上は、偏流を防止する流れの均一化を重視すべきである。

3.3 海水流路モデルの妥当性

微小空間の代表モデルとして選択した平行平板間および円管内の海水流路モデルについて、中空糸型モジュールの海水流路モデルとしての妥当性を検討する。無次元透過水体积流束が濃度分極を支配する因子であるので、モデル相互間における濃度分極の差は無次元透過水体积流束 F の定義式 Eqs. (43), (60) より、主に流路中心軸から膜面までの距離の差により定まる。平行平板間海水流路モデルの場合は、側面がないため、その距離は最も小さく、全周を囲われた円管内流路モデルの場合では、その距離が大きく、平行平板間の 2 倍となる。他の形状では、流路中心軸から膜面までの周方向平均距離 l を平行平板の距離で除した l/y_0 は、Fig. 7 に示すように、正三角形が 2.5 で最も大きく、角数の増加と共に円管内の値 $r_0=2y_0$ に漸近する。したがって、中空糸型モジュールの海水流路に関しては、平行平板間と円管内の海水流路モデルの対比から得られた F が拡散現象を十分代表するものと言える。

結 言

海水淡水化に多く使用されている中空糸型モジュールの海水流路を、中空糸束の微小空間構造を考慮して、平行平板間流路および円管内流路としてモデル化し、変数分離法を用いて、基礎方程式から速度分布の解析解および濃度分布の数値解を求めた結果、次の事柄が明らかとなった。

- (1) 流路中心軸から膜面に向う距離に対して、流路内の軸方向速度は 2 次式で、断面方向速度は 3 次式で表わされる。
- (2) 流路中心軸から膜面に向けて、流路内の濃度分布は単調に上昇し、無次元透過水体积流束が増加するにつれて、その変化は増大する。

- (3) 濃度分極比は無次元透過水体积流束と脱塩率によって表されるが、脱塩率の影響は小さい。また、濃度分極比と無次元透過水体积流速は直線関係にあり、この関係に及ぼす海水流路モデル間の差の影響は小さい。

- (4) 実用操作域では、膜面における濃度分極比は平均濃度の 1.01 以下となり、実用計算上は無視できる。

- (5) 既存の物質移動に関する経験式は、半無限液に対する濃度分極理論を適用したため、海水流路半幅に比べてはるかに大きい濃度境界層厚さを予測しており、不合理である。

- (6) これまで濃度分極比がレイノルズ数に関係するとされたのは、拡散抵抗と無関係なモジュール内海水の不均一な流れに起因したものと考えられる。今後モジュール性能の向上は、偏流防止策などの流速の均一化を重視すべきである。

- (7) 代表的な海水流路形状における流路中心軸から膜面までの周方向平均距離は、平行平板間と円管内の平均距離の範囲にはば納まるので、平行平板間および円管内の海水流路モデルについて検討することに妥当性がある。

Appendix. Eqs. (30), (31) の誘導

Eq. (22) を境界条件 Eqs. (24), (25) のもとで積分すると、

$$U = -\frac{f(x)y_0^2}{2} \left\{ 1 - \left(\frac{y}{y_0} \right)^2 \right\} \quad (\text{A } 1)$$

Eq. (A 1) が Eq. (19) から導かれる制約条件

$$\frac{1}{y_0} \int_0^{y_0} U dy = 1 \quad (\text{A } 2)$$

を満足するためには、

$$f(x) = -3/y_0^2 \quad (\text{A } 3)$$

Eq. (A 3) を Eq. (A 1) に代入すると、Eq. (30) が得られる。

Eq. (30) を Eq. (21) に代入すると、

$$\frac{dV}{dy} = -g(x) \frac{3}{2} \left\{ 1 - \left(\frac{y}{y_0} \right)^2 \right\} \quad (\text{A } 4)$$

Eq. (A 4) を境界条件 Eq. (27) のもとで積分すると、

$$V = -g(x) \frac{3y}{2} \left\{ 1 - \frac{1}{3} \left(\frac{y}{y_0} \right)^2 \right\} \quad (\text{A } 5)$$

Eq. (A 5) が境界条件 Eq. (27) を満足するためには

$$g(x) = -1/y_0 \quad (\text{A } 6)$$

Eq. (47) を Eq. (46) に代入すると、Eq. (31) が得られる。

Nomenclature

a	= distance between hollow fibers	[m]
b	= length of hollow fiber unit cell	[m]
C	= salt concentration distribution function ($=c/\bar{c}$)	[-]
c	= salt concentration	[kg/m ³]
$\bar{c}$	= average salt concentration	[kg/m ³]
c_m	= salt concentration at membrane surface	[kg/m ³]
D	= mass diffusivity	[m ² /s]
d_o	= outer diameter of hollow fiber	[m]
F	= dimensionless volumetric flux of water through membrane ($=F_p$ or F_T)	[-]
F_p	= dimensionless volumetric flux of water through membrane for parallel plate channel defined by Eq. (43)	[-]
F_T	= dimensionless volumetric flux of water through membrane for circular tube channel defined by Eq. (60)	[-]
$f(x)$	= unknown function of x in Eq. (22)	[1/m ²]
$g(x)$	= unknown function of x in Eq. (21)	[1/m]
J_s	= mass flux of salt through membrane	[kg/(m ² s)]
J_v	= volumetric flux of water through membrane	[m ³ /(m ² s)]
k	= mass transfer coefficient defined by Eq. (68)	[m ³ /(m ² s)]
l	= average diffusion distance between center line of channel and membrane surface	[m]

n	=angle numbers of channel cross-section	$[-]$	ρ	=density of sea water	$[\text{kg}/\text{m}^3]$
p	=pressure of sea water	$[\text{Pa}]$	ρ_w	=density of water	$[\text{kg}/\text{m}^3]$
R	=dimensionless radial coordinate defined by Eq. (59)	$[-]$			
Re	=Reynolds number defined by Eq. (70)	$[-]$			
r	=radial coordinate	$[\text{m}]$			
r_0	=radius of circular tube channel	$[\text{m}]$			
Sc	=Schmidt number defined by Eq. (71)	$[-]$			
Sh	=Sherwood number defined by Eq. (69)	$[-]$			
s_c	=surface area of membrane in hollow fiber unit cell	$[\text{m}^2]$			
U	=axial velocity distribution function ($=u/\bar{u}$)	$[-]$			
u	=axial velocity	$[\text{m}/\text{s}]$			
$\bar{u}$	=average axial velocity	$[\text{m}/\text{s}]$			
V	=cross-sectional velocity distribution function ($=v/v_r$)	$[-]$			
v	=cross-sectional velocity	$[\text{m}/\text{s}]$			
v_c	=volume of hollow fiber unit cell	$[\text{m}^3]$			
x	=axial coordinate	$[\text{m}]$			
Y	=dimensionless cross-sectional coordinate defined by Eq. (42)	$[-]$			
y	=cross-sectional coordinate	$[\text{m}]$			
y_0	=half width of parallel plate channel	$[\text{m}]$			
δ	=thickness of concentration boundary layer	$[\text{m}]$			
ϵ	=void fraction of sea water channel	$[-]$			
η	=salt rejection	$[-]$			
μ	=viscosity of sea water	$[\text{Pa}\cdot\text{s}]$			

Literature cited

- Cussler, E. L.; Diffusion, p.345, Cambridge University Press, New York, USA (1997)
- Dandavati, M., M. R. Doshi and W. N. Gill; "Hollow Fiber Reverse Osmosis. Experiments and Analysis of Radial Flow System," *Chem. Eng. Sci.*, **30**, 877-886 (1975)
- Hanbury, W. T., A. Yuceer, M. Tzimopoulos and C. Byabagambi; "Pressure Drops along the Hollow Fiber Modules-Their Measurement, Prediction and Effect on Fiber Module Performance," *Desalination*, **38**, 301-318 (1981)
- Kimura, S. and S. Nakao; Maku Bunri Gijutsu Manual, p.9-10, IPC, Tokyo, Japan (1990)
- Rautenbach, B. and W. Dahm; "Design and Optimization of Spiral Wound and Hollow Fiber RO-Modules," *Desalination*, **65**, 259-275 (1987)
- Sekino, M. and S. Fujihara; "Analysis of Hollow Fiber Reverse Osmosis Module," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **17**, 1088-1096 (1991)
- Soltanieh, M. and W. N. Gill; "Analysis and Design of Hollow Fibre Reverse Osmosis System," *Chem. Eng. Commun.*, **18**, 311-324 (1982)
- Society of Sea Water Science, Japan; Kaisui Riyo Handbook, p.109, Tokyo, Japan (1974)
- Toyobo Co., Ltd.; "HOLLOSEP®" Catalog No. A 0996 K, p.8, Osaka (1999)
- Wangnick, C.; "1998 IDA Worldwide Desalting Plant Inventory Report. No. 15," Wangnick Consulting GMBH, Germany (1998)

Mass Transfer in Hollow Fiber Module for Reverse Osmosis Seawater Desalination

HIDEO IWAHASHI¹, MASAHIRO KISHI² and OSAMU MIYATAKE¹

¹Department of Chemical Systems and Engineering, Graduate School of Engineering, Kyushu University, Fukuoka 812-8581

²Mechano Chemical Research Institute Co., Kobe 654-0012

Key words: membrane separation, reverse osmosis, desalination, mass transfer, performance calculation, concentration polarization.

With regard to mass transfer in a seawater flow channel of a hollow fiber module used for seawater desalination, the seawater flow channel in an infinitesimal space is taken as a model of a flow channel in a circular tube and between similarly parallel flat plates.

An analytical solution of velocity distribution and a numerical solution of concentration distribution are obtained from fundamental equations by use of a separation procedure of variables. As a result, the ratio of concentration polarization on a membrane surface is determined by salt rejection and a dimensionless volumetric flux of water through the membrane, that is, a product of the volumetric flux of water through the membrane and the half width of the flow channel are divided by a diffusion coefficient.

It has become clear that under practical operating conditions, the ratio of concentration polarization can be ignored. There is almost no difference between a seawater flow channel model with parallel flat plates and another model in the form of a circular tube. On the other hand, the calculated thickness of a concentration boundary layer is much larger than the width of the seawater flow channel in a conventional equation of mass transfer, which is expressed as a function of Reynolds number. It seems that this may be mistaken for a non-uniform flow not related to diffusion resistance.