浮遊粒子と吸着剤粒子からなる 2粒子分散系のブラウン動力学シミュレーション*

佐藤 明^{*1}, 種子 英児^{*2}

Brownian Dynamics Simulations of a Dispersion Composed of Two-Types of Spherical Particles Such as Adsorption Agents and Suspended Substances

Akira SATOH^{*3} and Eiji TANEKO

^{*3} Faculty of Systems Science and Technology, Akita Prefectural University,
84-4 Ebinokuchi, Tsuchiya-aza, Yuri-honjo-shi, Akita, 015-0055 Japan

We have carried out Brownian dynamics simulations of sedimentation phenomena of a dispersion composed of two-kinds of spherical particles in water under the gravity field. This study may be the first step to develop a new technology which enables us to improve the visibility of rivers and lakes. In the present study, we have modeled sub-micrometer-dimension particles, or dirty particles in lakes as small spherical particles, and capturing particles as large spherical particles; these two kinds of particles conduct Brownian motion in water, and large particles adsorb small particles to sediment gradually toward the bottom in the gravity field. From the results of Brownian dynamics simulations, the influences of Brownian motion, particle-particle interaction forces, the size of each particle, and the gravity force on the performance of the adsorption of large particles have been discussed. In addition, we have discussed what the most appropriate situation of large particles is to accomplish the most effective adsorption rate or improve the visibility of water most effectively in terms of capturing particles. The most important conclusion derived from the present results is that, in order to improve the capturing performance, the Brownian motion of large particles have to be activated in an appropriate number density without losing the influence of the gravity.

Key Words: Water Purification, Porous Absorbent, Suspended Substance, Brownian Dynamics Simulation

1. 緒 言

河川・湖沼の水質浄化を行うために、様々な方法が開発されている⁽¹⁻⁹⁾。具体的には、曝気により河川の自浄作用を促す方法^(1,2)、活性炭やゼオライトなどに代表される多孔性材料の吸着作用を使用した吸着法⁽³⁻⁵⁾、フィルター等を用いるろ過法⁽⁶⁾、硫酸アルミニウムなどの凝集剤を用いる凝集沈殿法⁽⁷⁾などが挙げられる。これらの手法は、対象とする水質汚染の状況に応じて種々に運用されているが、本研究において特に着目する、水の透視度の改善という点において最も効果的なものは、吸着法や凝集沈殿法といった、透視度悪化の原因の一つである浮遊物質を直接、吸着・凝集させることのできる方法である。このような方法を用いて水質の浄化を行う場合、化学的なアプローチが主であり、吸着剤や凝集剤、さらには浮遊物質の拡散現象や沈降

現象といった、物理的な観点からの検討があまりなされていない。しかしながら、投入物質や汚濁物質の水中における挙動は、その吸着性能や凝集過程を支配している要因の一つであり、無視することはできない。水中に存在する粒子の運動を解析することにより、投入する吸着剤または凝集剤や、対象とする汚濁粒子の状態を把握できることから、より幅の広い見地の下で水質浄化に取り組むことができる。

以上のような背景から本研究では、水中に分散している粒子の挙動を物理的に解析することにより、投入物質の最適な状態を詳細に検討することを目的とする。水中に存在する、サブミクロン・オーダーの汚濁物質は、時間が経過しても、沈降せず水中に漂った状態であることから、活発にブラウン運動を行っていると考えられる。また、それを捕獲する、ミクロン・オーダーの投入物質も、汚濁物質よりも活発ではないがブラウン運動を行うようにすればよい。ゆえに、投入物質と汚濁粒子とを対象に、ブラウン動力学法を適用し、シミュレーションを実行する。シミュレーションは重力の環境の下で行い、水中に存在する2成分粒子の挙動を詳

* 原稿受付 2008年6月23日。

^{*1} 正員, 秋田県立大学システム科学技術学部(〒015-0055 由利本荘市土谷字海老ノ口84-4)。

^{*2} 学生員, 秋田県立大学システム科学技術学部。
E-mail: asatoh@akita-pu.ac.jp

細に検討する。なお、吸着剤や凝集剤には、様々な物質が存在するが、多孔性材料を想定し粒子のモデル化を行う。

2. ブラウン動力学法

2.1 粒子モデル 本研究において採用する吸着剤である多孔性材料は、その表面や内部に無数の細孔および空孔を保持しており、その細孔径はある程度の分布を有している。その細孔分布や細孔径分布をシミュレーションにより再現するのは困難であるので、以下に示すモデルを用いる(図1)。吸着剤の粒子が持つ細孔は、その吸着剤粒子表面に一樣に分布しており、細孔径は全て同一であるものとする。浮遊物質の粒子が吸着剤粒子に接触すれば、内部へ吸着したと見なし、その浮遊粒子分だけ吸着剤粒子の質量を増加させる。そして、浮遊粒子は、一度吸着すれば解離はしないとす。つまり、吸着剤粒子に吸着した浮遊粒子の離脱はないものと仮定する。細孔の目詰まりは、吸着剤粒子が浮遊粒子よりも、十分に大きな粒子径を持つという条件の下でシミュレーションを行うことにより、考慮しない。また、粒子形状はどちらの粒子とも球状とし、2粒子間に働く相互作用エネルギーはレナード・ジョーンズ・ポテンシャルを用いる。よって、系内に存在する、任意の粒子 p と任意の粒子 q との相互作用エネルギー u_{qp} は次のように表される。

$$u_{qp} = 4\epsilon \left\{ \left(\frac{\sigma}{r_{qp}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{qp}} \right)^6 \right\} \quad (1)$$

ここに、 ϵ は相互作用エネルギーの大きさを表す定数であり、 r_{qp} は相互作用を行う粒子 q と p の間の距離を表す。 σ はポテンシャル・エネルギーがゼロになる粒子間距離であり、相互作用を行う粒子同士直径の算術平均に等しく、 $r_{qp} = \sigma$ であれば粒子同士が接触していることになる。

2.2 ブラウン動力学 系内に存在する大・小の粒子を、どちらもブラウン粒子とみなし、ブラウン動力学法を適用しシミュレーションを実行する。これ以後、

Fig.1 Particle models

吸着剤粒子を大粒子、浮遊粒子を小粒子と呼ぶことにす。下付き添字 s は小粒子に関する量を表し、下付き添字 b は大粒子に関する量を表すものとする。

本研究では、粒子の並進運動のみを扱い、回転運動は考慮しない。よって、小粒子 i と大粒子 j の運動方程式は次に示すランジュバン方程式により記述できる。

$$m_s \frac{dv_{si}}{dt} = -\xi_s v_{si} + F_{si}^p + F_{si}^B \quad (2)$$

$$m_{bj} \frac{dv_{bj}}{dt} = -\xi_b v_{bj} + F_{bj}^p + F_{bj}^B \quad (3)$$

ここに m_s は小粒子の質量、 m_{bj} は大粒子の質量であり、大粒子 j に吸着した小粒子の数 $N_j^{(ads)}$ と、その大粒子の初期質量 m_{b0} との間に $m_{bj} = m_{b0} + N_j^{(ads)} m_s$ の関係がある。大粒子に小粒子が接触した際の大粒子の質量増加のプロセスは、大・小粒子の粒子間距離 r_{bs} が $r_{bs} \leq (d_s + d_b)/2$ の条件を満たした場合、行われる。さらに、 v_{si} 、 v_{bj} は粒子の速度ベクトル、 F_{si}^p 、 F_{bj}^p は他のブラウン粒子から作用する力と外力(重力)の和、 F_{si}^B 、 F_{bj}^B は粒子のブラウン運動に起因するランダム力、 ξ_s 、 ξ_b は、直径 d_s 、 d_b の球状粒子の場合、ストークスの抵抗法則より、それぞれ $\xi_s = 3\pi\eta d_s$ 、 $\xi_b = 3\pi\eta d_b$ となる。また、 η は母液の粘度である。コロイド分散系のほとんどの場合では、式(2)、(3)の左辺の慣性項が省略でき、次に示す方程式に帰着する^(10,11)。

$$v_{si} = \frac{1}{\xi_s} (F_{si}^p + F_{si}^B) \quad (4)$$

$$v_{bj} = \frac{1}{\xi_b} (F_{bj}^p + F_{bj}^B) \quad (5)$$

式(4)、(5)を時間 t から時間 $(t + \Delta t)$ の微小範囲で積分すると、シミュレーションにおいて粒子の運動を追跡するための差分方程式が次のように得られる⁽¹⁰⁾。

$$r_{si}(t + \Delta t) = r_{si}(t) + \frac{1}{\xi_s} \Delta t F_{si}^p + \Delta r_{si}^B \quad (6)$$

$$r_{bj}(t + \Delta t) = r_{bj}(t) + \frac{1}{\xi_b} \Delta t F_{bj}^p + \Delta r_{bj}^B \quad (7)$$

F_{si}^p と F_{bj}^p は、重力加速度 $g = |g|$ および式(1)を用いると次のように表される。

$$F_{si}^p = m_s g + \sum_{p=1}^N 24\epsilon \left\{ 2 \left(\frac{\sigma}{r_{ip}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ip}} \right)^6 \right\} \frac{r_{ip}}{r_{ip}^2} \quad (8)$$

$$F_{bj}^p = m_{bj} g + \sum_{p=1}^N 24\epsilon \left\{ 2 \left(\frac{\sigma}{r_{jp}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{jp}} \right)^6 \right\} \frac{r_{jp}}{r_{jp}^2} \quad (9)$$

ここに、 N は系内に存在する粒子の数、 r_{ip} 、 r_{jp} は粒子 i または j の系内の任意の粒子 p に対する相対位置ベ

クトルで $\mathbf{r}_{ip} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_p$, $\mathbf{r}_{jp} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_p$, $r_{ip} = |\mathbf{r}_{ip}|$, $r_{jp} = |\mathbf{r}_{jp}|$. さらに σ は(小粒子)-(小粒子)の相互作用の下では d_s , (大粒子)-(大粒子)では d_b , (小粒子)-(大粒子)または(大粒子)-(小粒子)では $(d_s + d_b)/2$ である.

また, $\Delta \mathbf{r}_{si}^B$, $\Delta \mathbf{r}_{bj}^B$ は小粒子と大粒子のランダム変位を表し次の特性を有する⁽¹⁰⁾.

$$\langle \Delta \mathbf{r}_{si}^B \rangle = 0, \quad \langle \Delta \mathbf{r}_{si}^B \Delta \mathbf{r}_{si}^B \rangle = 2 \frac{kT}{\xi_s} \Delta t \mathbf{I} \quad (10)$$

$$\langle \Delta \mathbf{r}_{bj}^B \rangle = 0, \quad \langle \Delta \mathbf{r}_{bj}^B \Delta \mathbf{r}_{bj}^B \rangle = 2 \frac{kT}{\xi_b} \Delta t \mathbf{I} \quad (11)$$

ここに, k はボルツマン定数, T は母液の温度, $\mathbf{I}$ は単位テンソルである.

2.3 無次元化法 諸量を無次元化するにあたり, 次のような代表値を用いる. 距離の代表値として d_s , 重力と摩擦力を等しいとおくことで速度の代表値を $m_s g / 3\pi\eta d_s$, 時間の代表値を $3\pi\eta d_s^2 / m_s g$, 力は小粒子に作用する重力 $m_s g$ を代表値とする. 以上の代表値を用いて, 支配方程式の無次元化を行えば, 以下のようになる. なお上付き添字*は無次元量を表すものとする. 粒子位置について,

$$\mathbf{r}_{si}^*(t^* + \Delta t^*) = \mathbf{r}_{si}^*(t^*) + \Delta t^* \mathbf{F}_{si}^{P*} + \Delta \mathbf{r}_{si}^{B*} \quad (12)$$

$$\mathbf{r}_{bj}^*(t^* + \Delta t^*) = \mathbf{r}_{bj}^*(t^*) + \frac{1}{R_d} \Delta t^* \mathbf{F}_{bj}^{P*} + \Delta \mathbf{r}_{bj}^{B*} \quad (13)$$

他のブラウン粒子から作用する力と外力の和について,

$$\mathbf{F}_{si}^{P*} = \hat{\mathbf{g}} + 24R_{LJ} \sum_{p=1}^N \left\{ 2 \left(\frac{\sigma^*}{r_{ip}^*} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma^*}{r_{ip}^*} \right)^6 \right\} \frac{\mathbf{r}_{ip}^*}{r_{ip}^{2*}} \quad (14)$$

$$\mathbf{F}_{bj}^{P*} = m_{bj}^* \hat{\mathbf{g}} + 24R_{LJ} \sum_{p=1}^N \left\{ 2 \left(\frac{\sigma^*}{r_{jp}^*} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma^*}{r_{jp}^*} \right)^6 \right\} \frac{\mathbf{r}_{jp}^*}{r_{jp}^{2*}} \quad (15)$$

ここに, $\hat{\mathbf{g}}$ は重力方向を表す単位ベクトルである. さらに, ランダム変位の特性について,

$$\langle \Delta \mathbf{r}_{si}^{B*} \rangle = 0, \quad \langle \Delta \mathbf{r}_{si}^{B*} \Delta \mathbf{r}_{si}^{B*} \rangle = 2R_B \Delta t^* \mathbf{I} \quad (16)$$

$$\langle \Delta \mathbf{r}_{bj}^{B*} \rangle = 0, \quad \langle \Delta \mathbf{r}_{bj}^{B*} \Delta \mathbf{r}_{bj}^{B*} \rangle = 2R_B \frac{1}{R_d} \Delta t^* \mathbf{I} \quad (17)$$

以上の式に現れた各無次元パラメータは次の通りである. 直径比 $R_d = d_b/d_s$, 粒子間力の大きさを表すパラメータ $R_{LJ} = \varepsilon/m_s g d_s$, 粒子のブラウン運動の大きさを表すパラメータ $R_B = kT/m_s g d_s$ である. 質量比 $m_{bj}^* = m_{bj}/m_s$ は大粒子の質量増加に応じて変化する. また, 初期質量比は直径比と密度比 $R_{dens} = \rho_{bo}/\rho_s$ (ρ_{bo} :大粒子の初期密度, ρ_s :小粒子の密度)との間に $m_{bo}^* = R_{dens} R_d^3$ の関係にある.

2.4 粒子の初期配置 初期配置は図2のように設定し, シミュレーション領域は直方体とする. 具体的には, 高さ L_y^* を他の辺より長くし, 領域の大きさ (L_x^*, L_y^*, L_z^*) を $L_x^* = L_z^*$, $L_y^* = 2.5L_x^*$ のように設定した. L_y^* が L_x^* の何倍の大きさであるかによって, 大粒子が吸着する小粒子数の変化の度合は変動するが, 本研究においては, 他のパラメータを重点的に検討するため, シミュレーション領域の縦横比は一定とする. また, 大粒子と小粒子の配置させる領域を分け, 大粒子をシミュレーション領域上方に, 小粒子をそれ以外の領域に, どちらの粒子ともランダムに配置した. 水中において, 吸着剤と浮遊粒子はどちらも分散した状態である可能性もあるが, 大粒子が沈降とともにどのように小粒子を吸着していくかを評価するために, 配置させる領域を分割するようにした次第である.

Fig.2 An example of initial position of particles for $R_d = 50$

3. シミュレーションのための諸量の設定

シミュレーションに際しては、大粒子の体積分率、粒子の直径比、粒子のブラウン運動の大きさを表すパラメータを何通りかに取り、その結果を検討する。これに加えて、初期状態において大粒子が配置される幅（厚さ） $b^{(th)}$ もパラメータとして取り入れる。この $b^{(th)}$ を用いて、大粒子が配置される領域の体積 $V^{(th)} = L_x \cdot b^{(th)} \cdot L_z$ における大粒子の体積分率 $\phi_{vb}^{(th)}$ を与えるようにする。これにより、大粒子がどの程度密な状態で配置されているかが把握できるようになる。小粒子の数 $N_s=1000$ とし、小粒子の体積分率は、次の手順で与えている。小粒子の体積分率の無次元量を用いた表示は $\phi_{vs} = \pi N_s / 6V^*$ であるので、 $\phi_{vs} = \pi N_s d_s^3 / 6V = (\pi N_s d_b^3 / 6V) \cdot (d_s / d_b)^3 = \tilde{\phi}_{vs} / R_d^3$ となる。ここに、 $\tilde{\phi}_{vs} (= (\pi d_b^3 / 6) \cdot N_s / V)$ は大粒子を小粒子

の数だけ配置した場合の体積分率、つまり、大粒子の直径を基準とした体積分率である。シミュレーションにおいては、 $\tilde{\phi}_{vs} = 0.6$, $R_d = 50$ と与え、 $\phi_{vs} = 0.000005$ と決定している。初期密度比 $R_{dens} = 0.001$ とし、これらのパラメータは一定とする。また、時間刻みは $\Delta t^* = 0.00005$ 、総時間ステップ数は100万ステップとした。境界条件として、 x , z 軸方向については、周期境界条件を設定し、 y 軸方向については、鏡面（弾性）反射を用いている。なお、初期条件の設定においては、物理現象として妥当であるパラメータを与えているが、一般的な議論を行うために、特定の物質の物性値は用いない。

4. 結果と考察

4.1 沈降・吸着過程のスナップショット シミュレーションにより得られたスナップショットを用い

Fig.3 Influence of diameter ratio R_d on small particle adsorption for $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$, $b^{(th)}=100$, $R_B=50$ and $R_{LJ}=100$ (NOS means the number of small particles)

て、結果を検討していく。スナップショットにおいては小粒子の吸着数に応じて大粒子の色を変化させている。小粒子をよく吸着した大粒子ほど、色が濃くなるように設定し、小粒子を50個以上吸着すれば、一番濃い黒色となる。また、「NOS」とは number of small particles の略であり、領域内に残存している小粒子の数を表す。図2で示したスナップショットの例のように、小粒子と大粒子の直径比が大きく、小粒子の体積分率が小さい場合、この残存する小粒子を視認することが困難である。ゆえにスナップショットでは、小粒子を10倍に拡大して表示している。

まず、直径比が変化することによる影響を検討する。図3に $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$, $R_B=50$, $R_{LJ}=100$, $b^{(th)}=100$ とし、(a) $\phi_{vb}=0.0034$, $R_d=50$, (b) $\phi_{vb}=0.03$, $R_d=100$ とした場合のスナップショットを示す。この二つの図において、 $\phi_{vb}^{(th)}$ は同一であるので、直径比が大きくなる、つまり、大粒子の直径が大きくなれば、大粒子

の数はそれに応じて減少することになる。

図3(a)の $R_d=50$ の場合と比較して図3(b)の $R_d=100$ の方が、大粒子が速やかに沈降していることがわかる。これは、直径比が大きい粒子ほど、その質量も大きくなるため、重力の作用をより強く受けるからである。また、式(17)で示した、ランダム変位の確率特性を参照すれば、大粒子の直径が大きくなるほど、ブラウン運動を特徴づけるランダム変位は小さくなることからわかる。これにより、重力に対する熱エネルギーの大きさが小さくなり、沈降しやすくなる。さらに、粒子色の違いより、一つの大粒子に吸着する小粒子の数は、 $R_d=100$ の方が多くなっている。この理由として、系内に存在する大粒子数の差による影響や大粒子の直径に起因する表面積の差の影響が挙げられる。しかしながら、一つの大粒子に吸着する個数は少ないが、最終的には $R_d=50$ の方が大量に小粒子を吸着している。これは、大きい粒子をまば

Fig.4 Influence of random force R_B on small particle adsorption for $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$, $\phi_{vb}=0.034$, $b^{(th)}=100$, $R_d=50$ and $R_{LJ}=100$

らに投入するよりも、小さい直径を有する粒子を大量に投入するほうが効果的であることを示している。

次に、粒子のブラウン運動に起因するランダム力 R_B を変化させてシミュレーションを行った場合について検討する。図4に $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$, $\phi_{vb}=0.034$, $R_d=50$, $R_{LJ}=100$, $b^{(th)}=100$ とし、(a) $R_B=25$, (b) $R_B=100$ と与えた場合のスナップショットを示す。

図4(a), (b)を比較すれば、ランダム力が大きい場合である、図4(b)の $R_B=100$ の方が小粒子をよく吸着していることが確認できる。 $R_B=20$ のように、シミュレーション領域の大きさに対して、ランダム変位が小さい場合においては、大粒子の沈降経路付近に存在していた小粒子が優位に吸着され、それ以外にある小粒子は大粒子間の隙間から、通り抜けてしまい吸着されない。その結果、小粒子が捕獲されにくくなる結果となってしまう。一方、 $R_B=100$ のように、ランダム力が大きくなれば、小粒子および大粒子のランダム変位が大きくなり、大粒子と小粒子同士が接触しやすくなるので、小粒子数の減少の傾向をよく示すようになる。また、図4(b)の $t^*=25$ の図より、初期配置において下方に位置していた大粒子の色が、上方に位置していた大粒子より濃くなっていることが確認できる。このことから、大粒子が活発に運動するようになると、初期配置において下方にあった大粒子が小粒子をよく吸着するようになることがわかる。

4.2 小粒子数の時間変化 前節において述べた、直径比の影響およびランダム力の影響を定量的に検討するために、小粒子数の時間変化のグラフを図5, 6に示す。図5は、図3(a), (b)で示したスナップショットのパラメータの条件に加えて、 $R_d=75$ の結果も

同時にプロットした図である。さらに、図6は、図4の場合に加えて、 $R_d=50$ (図3(a)の場合) の結果も合わせてプロットした図である。このどちらの図においても、曲線の傾きの急激な変化が見られるが、これは、大粒子がシミュレーション領域の最下面に達したため小粒子をあまり吸着しなくなったことに起因するものである。

まず、図5の直径比の変化がもたらす影響を検討していく。この図において、シミュレーション開始から間もない期間においては、 $R_d=75$ や 100 の方が、小粒子の減少の傾向が顕著であることがわかる。前の4.1節において指摘したように、直径比が大きい粒子ほど、沈降速度が速いため、沈降経路に存在する小粒子をいち早く吸着するのである。しかしながら、大粒子がシミュレーション領域の最下面に達する時間が早いため、 $R_d=75$ では $t^*\approx 14$, $R_d=100$ では $t^*\approx 8$ 以降において小粒子はあまり顕著な減少の傾向を示していない。一方、 $R_d=50$ の場合においては、大粒子の沈降速度が遅いため、小粒子は緩やかに減少していくが、大粒子がシミュレーション領域内に浮遊している時間が長いため、最終的には小粒子を一番よく吸着している。

以上より、次のことが言える。大粒子の体積分率を一定に保った状態において、大粒子径を変化させた場合においては、短時間で小粒子を減少させるためには、大粒子の直径を大きくするのがよいが、残存する小粒子は多くなってしまう。その点、直径を比較的小さくして、大量に投入した場合には、効果が得られるまでの時間が長くなるものの、最終的には多くの小粒子を捕獲することが可能となる。

次に、ランダム力の影響を検討する。図6を見る

Fig.5 Time variation in the number of small particles for $\phi_{vb}^{(th)} = 0.3$

Fig.6 Time variation in the number of small particles for $\phi_{vb}^{(th)} = 0.3$

Fig.7 Thickness of large particles layer in initial position for $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$ ((a) $b^{(th)}=50$, $\phi_{vb}=0.017$;
(b) $b^{(th)}=70$, $\phi_{vb}=0.024$; (c) $b^{(th)}=150$, $\phi_{vb}=0.051$)

Fig.8 Time variation in the number of small particles
for $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$

Fig.9 Influence of $b^{(th)}$ on small particles adsorption

と、ランダム力の増加とともに、小粒子数はよく減少していることがわかる。しかしながら、 $R_b=50$, 100 の間の変化には、 $R_b=25$ と $R_b=50$ 間の場合のような劇的な変化が見られない。以上の結果より、ランダム力が大きいほど、小粒子はよく減少するが、大粒子が $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$ のように密な状態で系内に存在している場合においては、 R_b の値をある程度大きくしても（この場合は $R_b=50$ 以上）、顕著な変化が得られるわけではないということになる。

4.3 大粒子層の厚さ 本節においては、初期配置における、大粒子が配置される厚さに着目し、大粒子の最適な状態について検討する。大粒子が形成する層が厚いほうが、小粒子は大粒子に接触する可能性が上がるため、小粒子の減少率は増加することが考えられる。しかしながら、いくら何層に渡り、大粒子を配置したとしても、吸着に寄与しない大粒子が存在すれば、効果的とはいえない。そのため、適切な大粒子の配置幅を検討する。

これらを詳細に把握するために、初期配置において大粒子の厚さである、 $b^{(th)}$ の変化の影響を検討する。厚さは、 $b^{(th)}=50, 70, 100, 150$ と変化させる。その際、 $\phi_{vb}^{(th)}=0.3$ とし、大粒子層の厚さが変化しても、大粒子の、配置領域における密度は一定となるように設定する。 $b^{(th)}$ を直径比を用いて表すと、 $b^{(th)}=R_d, 1.4R_d, 2R_d, 3R_d$ と変化させていることになる。なお、他のパラメータは図 6 において、一番小粒子を減少させた $R_b=100$ の場合と同一のものを用いる。

図 7 に $b^{(th)}=50, 70, 150$ の場合の初期配置を示す。 $b^{(th)}=100$ は、前述のスナップショット（図 3(a)など）において示しているので、再度表示はしない。図 8 に $b^{(th)}$ をそれぞれ変化した場合の小粒子数の時間変化を、さらに図 9 に同数の小粒子を吸着した大粒

子の合計数の分布を示す。図8において小粒子の減少の傾向が顕著であり、かつ、図9において小粒子吸着に寄与しない大粒子が少ないパラメータほど効果的であり、大粒子は吸着性能を発揮できているとすることができる。

図8を見ると、 $b^{(u)}$ が増加すれば、小粒子の減少数も増加していることがわかる。 $b^{(u)}=50\sim100$ 間においては、 $b^{(u)}$ が増すほど小粒子数の減少率は増加する傾向にあるが、 $b^{(u)}=100, 150$ 間においては、小粒子の減少の傾向に顕著な違いはあまり見られない。さらに図9によれば、 $b^{(u)}=50$ においては、19~45個（グラフの横軸の量）の小粒子を吸着した大粒子が1~3個（グラフの縦軸の量）に分布し存在している、 $b^{(u)}=70$ では9~41個、 $b^{(u)}=100$ では、1~44個の小粒子を吸着した大粒子が、それぞれ1~5個、1~7個に分布し存在している。さらに、 $b^{(u)}=150$ の場合では、0~48個の小粒子を吸着した大粒子が1~13個に分布しおり、小粒子を一つも吸着していない大粒子が存在している。図8において $b^{(u)}=100$ と150との間で小粒子の減少の傾向にあまり変化が見られないのは、 $b^{(u)}=100$ の厚さで十分に小粒子を捕獲できているので、それ以上厚くした場合、このように一つも吸着しない大粒子が発生し始めるからである。

以上の結果をまとめれば、次のようになる。 $\phi_{ps}^{(u)}=0.3$ の下で、大粒子層の厚さが R_d 程度であると、小粒子は大粒子間の空隙を通過しやすくなり、小粒子はあまり減少の傾向を示さなくなる。しかしながら、 $b^{(u)}=1.4R_d$ のように厚さを R_d よりもやや大きくすると、小粒子は減少の傾向をよく示すようになる。さらに、厚さを R_d の2倍にすれば、若干ではあるが小粒子をあまり吸着しない大粒子が存在しているものの、大粒子は最終的に、ほぼ全ての小粒子を吸着することができる。 $b^{(u)}$ がさらに大きい、 $b^{(u)}=3R_d$ においては、吸着に全く寄与しない粒子が発生し、上方に存在する大粒子は、その吸着能力を発揮できなくなってしまう、無駄になってしまう。本節で定義した吸着性能という観点から見れば、小粒子をよく吸着し、かつ、無駄な大粒子が少ない $b^{(u)}=2R_d$ がよい吸着性能を示しているといえる。

5. 結 言

本研究では、吸着剤粒子および浮遊粒子の挙動を、2粒子分散系のブラウン動力学シミュレーションを行い、詳細に検討した。具体的には、投入する粒子

と浮遊粒子との直径比、ブラウン運動に起因する粒子のランダム力、初期配置における大粒子の配置幅などが吸着性能に与える影響を考察した。主な結果を要約すれば以下の通りである。大粒子の体積分率が一定の条件の下、直径比のみを変化させた場合、直径比が小さい、つまり大粒子が多量に存在するほど小粒子の減少率は上昇する。その際には、大粒子直径が小さくなることに起因する、大粒子の沈降速度の減少に注意する必要がある。大粒子のブラウン運動は小粒子の減少率に顕著に影響し、ブラウン運動が活発であると、小粒子はよく減少する。また、大粒子層の厚さも、重要な因子であり、適切なランダム力の下では、大粒子径の2倍程度の幅があれば、各大粒子は自身の持つ吸着能力を発揮でき、かつ小粒子を顕著に減少させることができる。

文 献

- (1) Okai, T., Sasada, Y., Komino, S. and Tanaka, S., *Annual report of Kagawa Prefectural Research Institute for Environmental Sciences and Public Health*, Vol.6 (2007), pp. 29-36.
- (2) Takahashi, M., *Journal of Water and Waste*, Vol.32, (1990), pp.668-675.
- (3) Ismadji, S. and Bhatia, S.K., *Carbon*, Vol.39, No.8, (2001) pp.1237-1250.
- (4) Piotr A. Gauden., Artur P. Terzyk. and Piotr Kowalczyk., *J.Colloid.Inter.Sci.*, Vol.300, No.2, (2006), pp.453-474.
- (5) Takami, Y., Murayama, N., Ogawa, K., Yamamoto, H. and Shibata, J., *Journal of the Mining and Materials Processing Institute of Japan*, Vol.116, No.9, (2000), pp.789-794.
- (6) Imamura, N., Yoshizawa, A. and Sakai, M., *Journal of Water and Waste*, Vol.47, No.9, (2005), pp.793-799.
- (7) Adachi, Y., Tanaka, Y. and Ooi, S., *Transaction of the Agriculture Engineering Society, Japan*, Vol.67, No.5, (1999), pp.593-599.
- (8) Horasawa, I., *Pollution and purification of water*, (1974), Rigaku Shoin, Tokyo. (in Japanese).
- (9) Motohashi, K., *A manual for Purification of Water Quality*, (2001), Kaibundo, Tokyo. (in Japanese)
- (10) Satoh, A., *Introduction to Molecular-Microsimulation of Colloidal Dispersions*, (2003), Elsevier Science, Amsterdam.
- (11) Kamiyama, S. and Satoh, A., *Microsimulation of Colloidal Dispersions*, (1997), Asakura Shoten, Tokyo. (in Japanese)