研究報告

希薄な微粒子サスペンションのガラス繊維ろ紙によるろ過

Filtration of a Dilute Suspension of Fine Particles Using Glass-Fiber Papers

山根恒夫*

Tsuneo Yamane

1. 緒言

一般に、ろ紙は、実験室で、液中の沈殿や微粒子をろ過するのに古くからしばしば使用されてきた。また、近年では、工場排水など水中の懸濁物質(SS)の定量分析のため、ガラス繊維ろ紙を用いる方法が取り上げられている¹⁾。ガラス繊維ろ紙は、セルロース繊維ろ紙に比較して、ろ過速度が速い・微粒子を保持できる・ろ紙の寿命が長い・高温度に耐えられる・薬品に侵されにくい・ろ紙の重量が変わらない・生物学的に不活性である、などのすぐれた特長を持っており、今後ますます広く使用されるであろう。

ろ紙は、また、エアフィルターとして気流中からエアロゾル粒子を除去するにもよく利用されている。そして、井伊谷・牧野²⁾は、ろ紙をエアフィルターとして使用する場合の捕集性能について、定量的な研究を行っている。

前述の懸濁物質(SS)の分析や、清澄ろ過への適用の可能性など、希薄な微粒子サスペンションをろ紙でろ過する場合はかなりあると思われるが、しかしながら、このろ過の定量的研究は、著者の知る限り、見あたらない。著者は、水中のサブミクロン微小油滴濃度の測定のためにガラス繊維ろ紙を使用した³⁾、その定量分析の

前提として、希薄な微粒子(数ミクロンからサブミクロンの範囲)サスペンションをろ過する場合のガラス繊維ろ紙のろ過性能を調べたので報告する。

2. 実験方法

使用したガラス繊維ろ紙は、英国 W. & R. Balstone Ltd. 社製(商品名ワットマン)のA, B, C, Dの4種類である。その一般的性質は、Table 1 に記載してある。ただし、表中、重量、厚さ、吸水量はメーカーのカタログから転載したものである。また、充てん率 $1-\varepsilon_f$ は、次式より算出した。

$$1-\varepsilon_f = \frac{W}{\rho_f \cdot L} \quad \dots\dots(1)$$

この式で、ガラス繊維の密度 ρ_f としては、ホウケイ酸ガラスの平均的密度 2.3g/cm^3 という値を使用した。ろ紙の性能を規定する重要な因子は、繊維の直径 D_f であるので、光学顕微鏡で実測を試み、1ミクロン前後であることはわかったが、正確には求めることができなかった。

ろ紙の捕集性能を知るには、種々の粒径の単分散サスペンションがあると容易である。本研究では、米国 Dow Chemical 社から市販されている商品名 “Uniform Latex Particles” を使用した。この粒子は、通常 10% solid として市販されており、粒子はポリスチレンでできており、粒子の比重は1.05である。その特長は、粒子径が驚くほど均一(公表してある直径 ± 0.05 ミクロン以内)であるから単分散とみなすことができ、また、0.09 ミクロンから5ミクロンの範囲で各径の粒子サスペンションが揃えてある。この “Uniform Latex Particles” の10%サスペンションを約1000~5000倍に純水で希釈して、ろ過すべき検液とした。

ろ過実験は次のようにして行なった。まず、垂直方向にセットされたフィルター枠に、ガラス繊維ろ紙をはさみ、クランプまたはネジでしっかりと固定する。その

Table 1 使用したろ紙の一般的性質

種 類	A	B	C	D
項 目				
重 量, W , $[\text{g/cm}^2]$	0.0052	0.0150	0.0052	0.0120
厚 さ, L , $[\text{cm}]$	0.025	0.073	0.026	0.067
充てん率, $1-\varepsilon_f$, $[-]$	0.090	0.089	0.092	0.078
繊維直径, D_f , $[\mu]$	≈ 1	≈ 1	≈ 1	≈ 1
吸 水 量 $[\text{ml/m}^2]$	275	675	250	900

昭和49年5月29日受理

* 京都大学工学部 (〒606 京都市左京区吉田本町)

TEL 075-751-2111, 現在英国留学中

際、ガラス繊維ろ紙はステンレス金網でできた支持物の上に置かれる。いっぽう、検液を微量定量注入ポンプの注射器に入れ、注射器とろ過器上部とをゴム管でつなぎ、ろ過面より上部にある空気を適当な方法で除き、ついでポンプの電源スイッチを入れる。この微量定量注入ポンプ（商品名ツルース万能注入器、中川誠光堂製、東京）においては、注射器の内筒が一定速度で押されることによって、注射器内の液が一定流量で押し出される。ろ液は、あらかじめろ過器下部の下に置かれたビーカーに受け留める。ろ過面積は、 0.58cm^2 、 12.5cm^2 の2段階について実験し、ろ過処理量は前者の場合は約 10ml 、後者の場合は約 30ml である。注射器の内筒の押し出し速度と、注射器の大きさを種々変えることにより、ろ過速度を幾段階か変えた。

ろ液中と検液中のサスペンション濃度の比 C_1/C_0 は、島津ボッシュム回折格子形光电比色計（商品名スペクトロニック20）を用いて、波長 570nm で濁度を測定することにより求められた。その際、温度が 0.25 以下では、サスペンション濃度と濁度との間にはほぼ比例関係があるので、濁度の測定値がこの範囲内に入るように、必要があれば、適当な倍率で希釈して測定した。すなわち、試料液の希釈倍率を d 、希釈後の濁度を T とすると、計算式は、

$$\frac{C_1}{C_0} = \frac{d_1 T_1}{d_0 T_0} \quad \dots\dots(2)$$

となる。総合捕集効率 η は

$$\eta = \frac{C_0 - C_1}{C_0} = 1 - \frac{C_1}{C_0} \quad \dots\dots(3)$$

より計算される。

3. 実験結果と考察

ろ紙による希薄サスペンションのろ過の場合も、液体中の微粒子がフィルターを構成している個々の繊維により捕集され、ろ紙はデプスフィルターとして働くことには変わらないとすれば、エアロゾル粒子の繊維層フィルターによる捕集と同様な取り扱いが可能であろう。すなわち、総合捕集効率を η 、繊維間干渉効果を含んだ単一繊維捕集効率を η_e とすれば、いわゆる対数透過式

$$1 - \eta = \exp \left\{ - \frac{4(1 - \varepsilon_f) \cdot L}{\pi D_f} \eta_e \right\} \quad \dots\dots(4)$$

が基礎式となるであろう。以下、(4)式を念頭において実験結果を述べ、考察を加える。まず、同一のろ紙を幾枚か重ねて使用することによって、厚さ L を幾段階か変え、ほかのろ過条件は一定に行なった実験の結果を Fig. 1 に示した。厚さ L 以外の条件が一定ならば、調べた実験範囲内では、(4)式で表わされているように、明らかに $\ln(1 - \eta) \propto (-L)$ であり、厚さに関しては対数透過性が成立していることがわかる。

つぎに、ろ過性能におよぼす粒子径の影響を調べた結果を Fig. 2 に示した。図中、D(2)と表わしたのはD型のろ紙を2枚重ねて使用したことを意味する。以下、ほかについても同様である。調べた粒子径の範囲内では、ほかのろ過条件が一定ならば、 $\ln(1 - \eta) \propto (-D_p^2)$ であった。(4)式では、粒子径の影響は η_e のみに含まれるので、

Fig. 1 Effect of Filter thickness on the fraction of latex particles passing through the filter. ($D_p = 0.794\mu$, $S = 12.5\text{cm}^2$, $u_s = 0.120\text{cm/sec}$)

Fig. 2 Effect of particle diameter on the fraction of latex particles passing through the filter

となる。

さて、エアロゾルの繊維層フィルターによる捕集の主な機構としては、慣性衝突効果、さえぎり効果、拡散効果、静電気効果などが一般に考えられている。そして、単一繊維に対してさえぎり効果のみが働く場合について、Friedlander⁴⁾ は理論的に考察して、

$$\eta_0 = 2BN_{Re}^2 = 2B\left(\frac{D_p}{D_f}\right)^2 \quad \dots\dots(6)$$

となることを示した。ここで、 B は繊維まわりの流れ関数の係数であり、レイノルズ数 N_{Re} の関数と考えられる。

希薄エマルジョンのろ紙によるろ過について(5)式が成立するという事は、 B をろ紙内部での繊維間干渉効果を含んだ値とみなすならば、(6)式が成立すると拡大解釈できよう。したがって、捕集機構としては、ろ紙フィルターによるエアロゾルのろ過と同様にさえぎり効果が支配的と考えられる。

いま、温度25℃の純水（密度 $\rho_l = 1.0\text{g/cm}^3$ 、粘度 $\mu_l = 0.009\text{g/cm}\cdot\text{sec}$ ）中に径 $D_p = 1.0\mu$ のポリスチレン粒子（密度 $\rho_p = 1.05\text{g/cm}^3$ ）が懸濁している希薄エマルジョンを、平均径 $D_f = 1.0\mu$ のガラス繊維からなる充てん率 $(1-\varepsilon_f) = 0.09$ のろ紙（厚さ $L = 0.073\text{cm}$ ）によって、線速度 $u_s = 0.12\text{cm/sec}$ ($u = u_s/\varepsilon_f = 0.13\text{cm/sec}$) でろ過する場合について、慣性パラメータ Ψ 、レイノルズ数 N_{Re} 、ペクレ数 N_{Pe} を計算してみると次のようになる。

$$\begin{aligned} \Psi &= \frac{(\rho_p - \rho_l)u D_p^2}{18\mu_l D_f} \\ &= \frac{(1.05 - 1.00)(0.13)(10^{-4})^2}{(18)(0.009)(10^{-4})} = 4.72 \times 10^{-6} \quad \dots\dots(7) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} N_{Re} &= \frac{D_f u \rho_l}{\mu_l} \\ &= \frac{(10^{-4})(0.13)(1.0)}{(0.009)} = 1.47 \times 10^{-3} \quad \dots\dots(8) \end{aligned}$$

$$N_{Pe} = \frac{u D_f}{D_{BM}} = \frac{(0.13)(10^{-4})}{(5.46 \times 10^{-9})} = 2.42 \times 10^3 \quad \dots\dots(9)$$

これらの無次元式の値から判断しても、希薄エマルジョンのろ過においては、さえぎり効果が支配的であることがわかる。すなわち、ポテンシャル流では、 Ψ が1/16以上の場合、慣性効果が現われてくると考えられている

が、(7)式の Ψ の値はこの限界値よりはるかに小さいので、慣性効果は作用しない。また、ブラウン運動による微粒子の拡散係数 D_{BM} は、 $D_{BM} = CkT/3\pi\eta D_p$ であり、ほかの条件が同じならば分散媒の粘度に逆比例するので、水中の微粒子の拡散係数は、空気中のその約 2×10^{-2} 倍となり、拡散効果はきわめて少ないと考えられる。

ここで参考のために前述と同一条件下でさえぎり支配領域での Langmuir の式によって単一繊維捕集効率 η_0 をもとめてみると、0.075 になり、さらに対数透過式(4)式により総合捕集効率 η を計算すると 0.998 となる。この値は実際の値(0.89)に比較してかなり高い。この原因としては粒子径が繊維径に比べて無視できなくなりその結果として繊維まわりの流れが変化すること、あるいは再飛散が存在することなどが考えられる。

Fig. 3 には、ろ過線速度 u_s と $(1-\eta)$ との関係を示した。実験した範囲では、

$$\ln(1-\eta) \propto (-u_s^{1/6}) \quad \dots\dots(10)$$

である。

さて、(6)式において、干渉効果を含まない単一繊維まわりの理論的流れ関数 B は、Lamb⁵⁾ により、(11)式で与えられる。なお、 B としては干渉効果を考慮した Kuwabara の式があるが、この式には N_{Re} の項が含まれていないし、また、干渉効果についての定量的な説明がまだ充分確立されていないので本報では Lamb の式を採用して検討することにした。

$$B = \frac{1}{2(2 - \ln N_{Re})} \quad \dots\dots(11)$$

(11)式は、 $10^{-4} < N_{Re} < 10^{-1}$ の範囲ならば、次式のように近似される。

Fig. 3 Effect of superficial filtration velocity on the fraction of latex particles passing through the filter.
Curve C(1) : filtration of $D_p = 0.794\mu$ particles suspension ;
Curve A(2) : filtration of $D_p = 1.305\mu$ particles suspension. Filter area are 0.58cm^2 for the both curves

$$2B=0.358N_{Re}^{1/6} \quad \cdots(12)$$

$N_{Re}=uD_f\rho_l/\mu_l$ であるから、(10)式と(12)式とは同じ内容を表わしていると考えられる。

(5), (6), (10), (12)の諸式より、ガラス繊維ろ紙による希薄サスペンションのろ過においては、

$$\eta_e \propto N_{Re}^{1/6} N_R^2 \quad \cdots(13)$$

が成立すると結論される。

(13)式における比例定数は、ろ紙フィルターによるエアロゾルのろ過の研究⁴⁾から類推すると、ろ紙を構成する繊維間の干渉効果、すなわちろ紙の繊維充てん率 ϵ_f には依存していると考えられるが、それ以外に、サスペンションを構成する液体と粒子との界面の電気化学的性質、すなわち静電気効果にも依存しているであろう。なぜならば、著者の研究³⁾によると、同一のろ紙を同じ枚数使い、同一線速度でろ過しても、純水よりも Tween80 (界面活性剤の一種)を加えた培地 (微生物を増殖させるため、主として無機塩類からなる種々な栄養物を含んだ水溶液をいう。詳細は文献³⁾を参照されたい。)の方が、捕集効率が高かったからである。この事実は、エアロゾル粒子の捕集と比較して、希薄サスペンション中の微粒子の捕集の場合は、静電気効果が強く影響することを示唆している。しかしながら、本研究においては、繊維間干渉効果および静電気効果については未検討であり、その

詳細については今後の研究に待たねばならない。

本研究において、希薄サスペンションとは、 $C_1/C_0 (=1-\eta)$ が C_0 によって変わらない範囲のサスペンションを意味している。また、粒子径は、ろ紙を形成している繊維と繊維との距離より十分小さいことを想定している。粒子径が大きい場合や、粒子濃度が高いか、あるいはろ過の処理量が多くなれば、ろ過中、繊維間での目づまり、さらにはろ紙上でのケーキ形成などが起こり、もはや希薄サスペンションとはいえず、したがって、本研究で提出したような取り扱いはできないことは明らかである。

4. 結 論

純水中りにポスチレン微粒子を懸濁させた希薄サスペンションをガラス繊維ろ紙によって定速でろ過する実験を行ない、次の結論を得た。

(1)ろ紙の厚さに関しては対数透過性が成立し、ろ過の基礎式は(3)式で表わせる。

(2)単一繊維捕集効率に関しては(13)式のようになり、捕集機構としてはさえぎり効果が支配的である。

付 記

本研究を行なうにあたり、“Uniform Latex Particles”のサンプルを供与して下さいました京都大学工学部化学工学教室の井伊谷研究室に対して深く感謝いたします。

記

B	=流れ関数の係数	[-]
C	=サスペンションの粒子濃度	[particles/cm ³]
D	=直径	[μ] または [cm]
D_{BM}	=ブラウン運動による粒子の拡散係数	[cm/sec ²]
d	=希釈率	[-]
L	=ろ紙の厚さ	[cm]
N_{Pe}	=ペクレ数 ($=D_f u/D_{BM}$)	[-]
N_R	=さえぎりパラメーター ($=D_p/D_f$)	[-]
N_{Re}	=レイノルズ数 ($=D_f u \rho_l/\mu_l$)	[-]
S	=ろ過面積	[cm ²]
T	=濁度	[-]
u	=ろ過線速度	[cm/sec]
u_s	=ろ過のみかけ線速度	[cm/sec]
W	=ろ紙の重量	[g/cm ²]

号

ϵ_f	=ろ紙の空隙率	[-]
η	=総合捕集効率	[-]
η_0	=単一繊維の捕集効率	[-]
η_e	=繊維間干渉効果を含んだ単一繊維の捕集効率	[-]
μ	=粘度	[g/cm ³ sec]
ρ	=密度	[g/cm ³]
Ψ	=慣性パラメーター ($=(\rho_p-\rho_f)uD_p^2/18\eta_l D_f$)	[-]

Suffix

f	=fiber
l	=liquid
p	=particle
0	=ろ過すべきサスペンション
1	=ろ液サスペンション

引 用 文 献

- 工場排水試験方法, JIS K-0102 (1971).
- 井伊谷鋼一, 牧野和孝, 井上修, 今村努: 化学工学, 34, 632 (1970).
- Yoshida, F., Yamane, T.: Biotechnol. Bioeng., in

press.

4) Friedlander, S.K. : *Ind. Eng. Chem.*, 50, 1161 (1958)

5) Lamb, H. : *Hydrodynamics* (6th Ed.), 607 (Wiley, New York) (1932)

Author's Abstract

"Filtration of a Dilute Suspension of Fine Particles by Glass-Fiber Papers"

by

Tsuneo YAMANE

(Department of Chemical Engineering, Kyoto University, Kyoto, Japan)

Several quantitative experiments were carried out on the filtration of fine particles of polystyrene in dilute suspension using various glass-fiber paper filters. Each experimental run was performed at constant filtration rate by forcing the suspension through the filter using a syringe-type micro-injection pump. From the experiments, the following results were obtained within the range of experimental conditions.

- 1) The so called log-penetration law is applicable to the thickness of paper filters. The basic equation for filtration could be expressed as eq. (3).
- 2) The collection efficiency of a single fiber with the interference effect is given by eq. (13). The effect of direct interception seems to be the predominant mechanism for the collection of fine particles in dilute suspension in pure water by the glass fibers.

Further studies are necessary on the effect of both the fibrous solid fraction in a paper filter and electrostatic forces on the collection efficiency in order to elucidate the proportionality constant in eq. (13).