

# 閉塞理論の解説とろ過結果への適用

日本ポール株式会社 応用技術研究所  
角屋 正人

## 1. はじめに

フィルターは流体中の異物を捕捉し流体から異物を除去することを目的として使用されるが、表面および細孔内に異物を保持することで流れに対する抵抗が増していく。これにより、フィルター閉塞が起こる。閉塞は、ろ過操作において流量低下あるいは差圧上昇の形で現れ、ある限界値（ユーザー事情で設定）を超えた時点でフィルター寿命に達したと判断され使用が停止される。そのため、ろ過操作を行う上で、対象流体でのフィルター閉塞の進行を正確に把握することが重要になる。使用実績のない流体に新たにフィルターを適用する際は、ラボスケール、実機スケールでのろ過試験が行われる。ろ液評価データとともにフィルター閉塞データを参考にして、フィルター選定、必要ろ過表面積の見積り、ろ過操作の検討が行われる。

ろ過試験は上記目的で行われるが、得られた結果を理論解析することにより、さらなる知見を得られることがある。

一般にフィルターの細孔構造は複雑であり、異物捕捉形態も複雑なことが想定されるが、単純な細孔構造、捕捉形態を仮定したモデルでの閉塞の進行と一致するケースが多く見られる。モデルを使った解析は、ろ過現象の特徴づけ、試験結果を分類しての蓄積、ろ過条件を変えた時の閉塞進行の見積もり等に活用できる可能性がある。このようなモデルとしてHermans-Bredée<sup>1)</sup>が提案した閉塞ろ過モデルが古くから知られており、完全閉塞、標準閉塞、中間閉塞の3つがある。また、ろ過のモデルとしてはケーキろ過もあり解析に利用されている。

本稿では、各モデルの形態、法則を解説した上で、実際のろ過結果に閉塞の式を適用した例を紹介する。

## 2. 閉塞モデル

いずれの閉塞モデルにおいても、ろ材を図1に示した均一な内径、長さをもった円管の束と仮定し、粒子捕捉による流路抵抗の変化を計算しモデル式を得る<sup>2)</sup>。円管の仮定により、ろ材の流れに対して円管内の層流の流れを示すハーゲンポアズイユの式(1)を適用することができる。

$$Q = \pi \cdot d^4 \cdot \Delta P / 128 \mu L \quad (1)$$

円管の流量計算式

Q : 円管の流量 (m<sup>3</sup>/s)      ΔP : 円管両端での差圧 (Pa)  
d : 円管の直径 (m)      μ : 流体の粘度 (Pa・s)  
L : 円管の長さ (m)

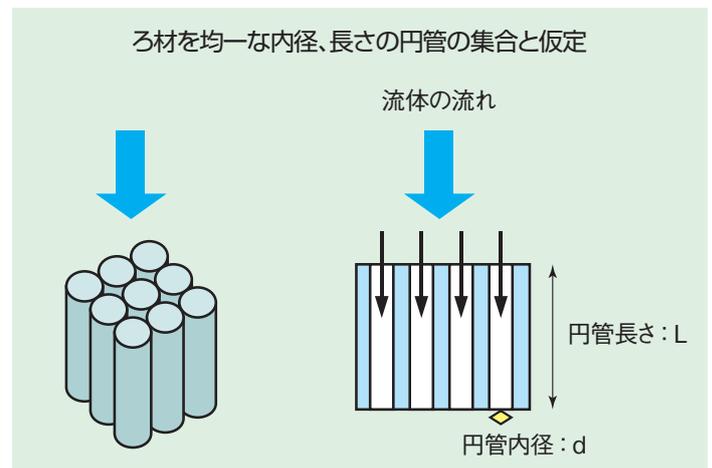


図1：ろ材の模式図



この式をろ材の流れに置き換えると (2) 式となる。いずれのモデル式も (2) 式より出発して導くことができる。

$$J = N \cdot \pi \cdot d^4 \cdot \Delta P / 128 \mu L \quad (2)$$

ろ過面積当り流量計算式

J : 単位ろ過面積当たりの流量 (m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>・s)    ΔP : 円管両端での差圧 (Pa)  
 N : 単位ろ過面積当たりの円管数 (1/m<sup>2</sup>)    μ : 流体の粘度 (Pa・s)  
 d : 円管の直径 (m)    L : 円管の長さ (m)

### 1) 完全閉塞

負荷した粒子が円管入口で捕捉され、管を完全に塞ぐというモデルである。その場合、開口円管の数Nは、負荷した粒子量に比例して減少する。模式図を図2に示した。開口円管の減少速度が、流量Jと粒子濃度C(kg/m<sup>3</sup>)に比例するとして、(3) 式をたてる。

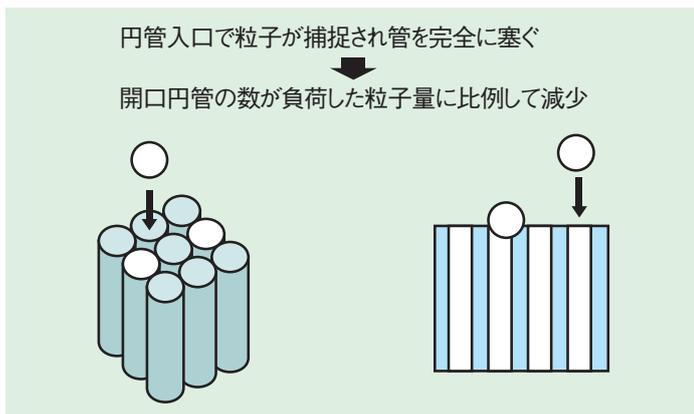


図2：完全閉塞のモデル図

$$\frac{dN}{dt} = -\alpha \cdot J \cdot C \quad (3)$$

開口円管減少速度と流量・粒子濃度の関係式

t : 時間 (s)  
 α : 係数 (1/kg)

(2)、(3) 式を連立して計算することにより、完全閉塞のモデル式が得られる。定流量ろ過での差圧ΔPとろ液量vの関係を(4)式に、定圧ろ過での流量Jとろ液量vの関係を(5)式に示した。(4)式より定流量ろ過では1/ΔPとvの関係が直線となることがわかる。(5)式より定圧ろ過ではJとvとの関係が直線となることがわかる。これを図3に示した。

$$\Delta P = \frac{\Delta P_0}{(1 - K_b \cdot v)} \quad (4)$$

定流量ろ過条件

ΔP<sub>0</sub> : ろ材両端での初期差圧 (Pa)  
 K<sub>b</sub> : 閉塞係数 (1/m)  
 v : 単位面積当たりのろ液量 (m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>)

$$J = J_0 \cdot (1 - K_b \cdot v) \quad (5)$$

定圧ろ過条件

J<sub>0</sub> : 単位ろ過面積当たりの初期流量 (m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>・s)

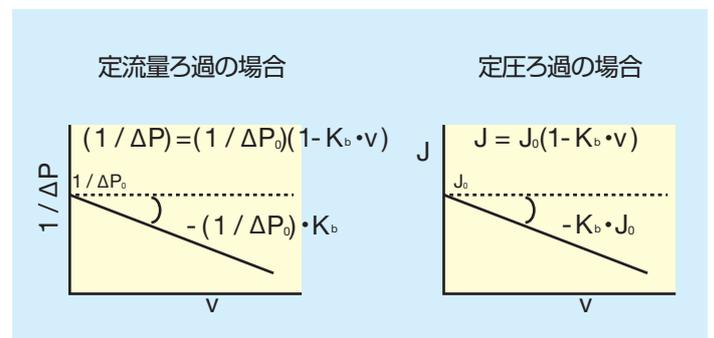


図3：完全閉塞でのろ液量vと差圧ΔP、流量Jの関係

### 2) 標準閉塞

負荷した粒子が円管内壁に均一に捕捉されるというモデルである。その場合、粒子負荷により円管の内径が減少していく。模式図を図4に示した。各円管の内容積の減少速度が流量Jと粒子濃度Cに比例するとして(6)式をたてる。

$$\frac{d(N \cdot \pi \cdot d^2 \cdot L / 4)}{dt} = -\alpha \cdot J \cdot C \quad (6)$$

円管内容積減少速度と流量・粒子濃度の関係式

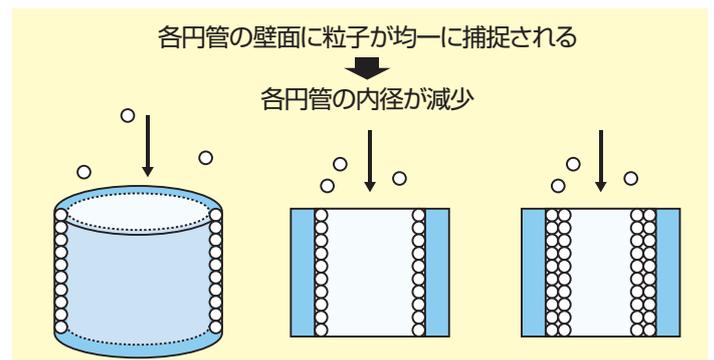


図4：標準閉塞のモデル図



(2)、(6) 式を連立して計算することにより標準閉塞のモデル式が得られる。定流量ろ過での差圧 $\Delta P$ とろ液量 $v$ の関係を(7)式に、定圧ろ過での流量 $J$ とろ液量 $v$ の関係を(8)式に示した。(7)式より定流量ろ過では $1/\Delta P$ の平方根と $v$ の関係が直線となることがわかる。(8)式より定圧ろ過では $J$ の平方根と $v$ との関係が直線となることがわかる。これを図5に示した。

$$\frac{dN}{dt} = -\alpha \cdot J \cdot C \cdot N \quad (9)$$

開口円管減少速度と流量・粒子濃度・開口円管数の関係式

(2)、(9) 式を連立して計算することにより中間閉塞のモデル式が得られる。定流量ろ過での差圧 $\Delta P$ とろ液量 $v$ の関係を(10)式に、定圧ろ過での流量 $J$ とろ液量 $v$ の関係を(11)式に示した。(10)式より定流量ろ過では $\Delta P$ の自然対数と $v$ の関係が直線となることがわかる。(11)式より定圧ろ過では $J$ の自然対数と $v$ との関係が直線となることがわかる。これを図7に示した。

$$\Delta P = \frac{\Delta P_0}{\left(1 - \frac{K_s \cdot v}{2}\right)^2} \quad (7)$$

定流量ろ過条件

$K_s$  : 閉塞係数 (1/m)

$$J = \left(1 - \frac{K_s \cdot v}{2}\right)^2 \quad (8)$$

定圧ろ過条件

$$\Delta P = \Delta P_0 \cdot \exp(K_i \cdot v) \quad (10)$$

定流量ろ過条件

$K_i$  : 閉塞係数 (1/m)

$$J = J_0 \cdot \exp(-K_i \cdot v) \quad (11)$$

定圧ろ過条件

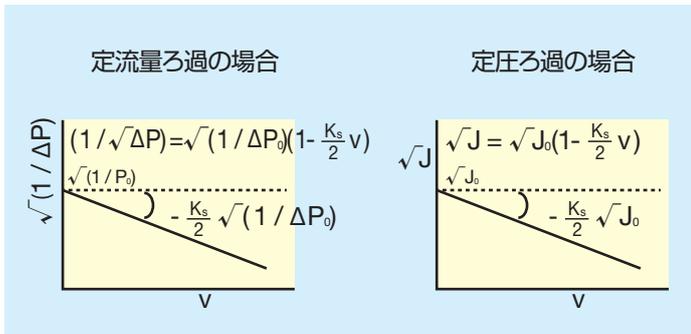


図5：標準閉塞でのろ液量 $v$ と差圧 $\Delta P$ 、流量 $J$ の関係

### 3) 中間閉塞

負荷した粒子が円管入口および既に捕捉された粒子上に捕捉されるというモデルである。その場合負荷された粒子は円管の開口部分と閉塞部分とに分配されるので、開口円管が塞がれる速度(割合)は開口円管の数に比例して減少する。模式図を図6に示した。開口円管数の減少速度が流量 $J$ と粒子濃度 $C$ および開口円管数 $N$ に比例するとして(9)式をたてる。

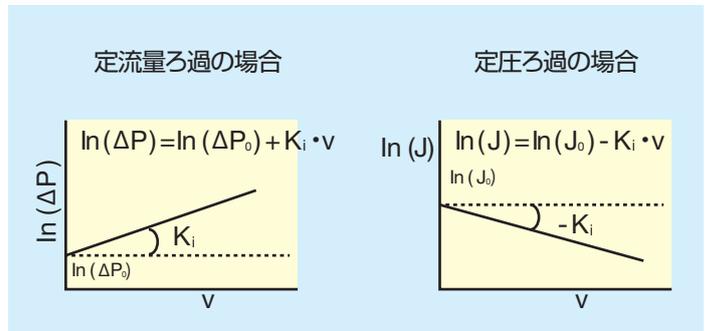


図7：中間閉塞でのろ液量 $v$ と差圧 $\Delta P$ 、流量 $J$ の関係

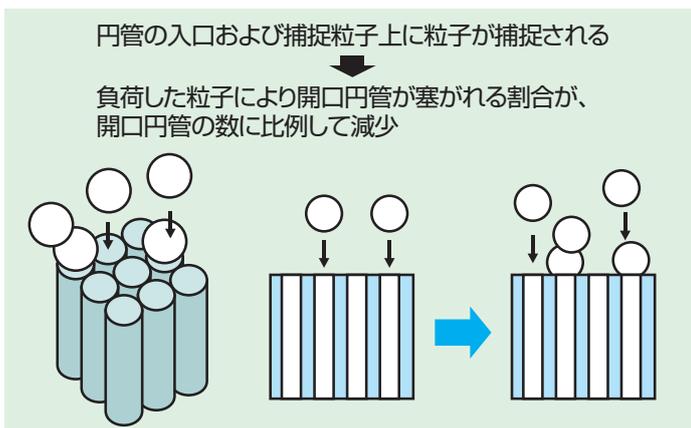


図6：中間閉塞のモデル図

### 4) ケーキろ過

負荷した粒子が円管を塞ぐことなく、ろ材(円管の束)表面に堆積していくというモデルである。その場合、負荷した粒子量に比例して、堆積粒子(ケーキ層)の厚みが増していく。模式図を図8に示した。ここで堆積粒子による抵抗増加を、円管が長くなったことに置き換える。模式図を図9に示した。 $L_m(m)$ はろ材抵抗に相当する円管の長さ、 $L_c(m)$ はケーキ層の抵抗に相当する円管の長さを表す。ここでハーゲンポアズイユの式をろ材に適用した(2)式の $L$ を、 $L = L_m + L_c$ として(12)式のように書き換える。

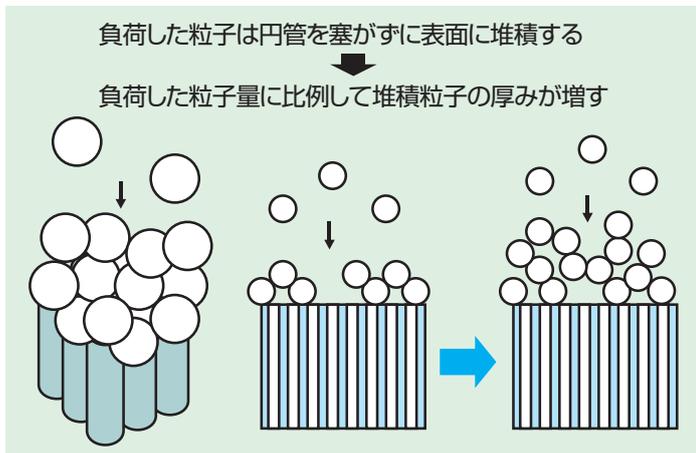


図8：ケーキろ過のモデル図 ①

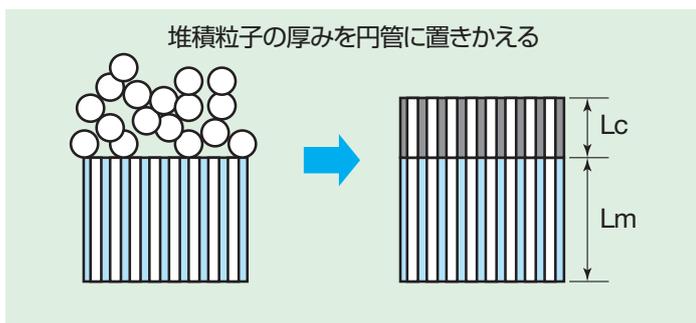


図9：ケーキろ過のモデル図 ②

$$J = \frac{N \cdot \pi \cdot d^4 \cdot \Delta P}{128 \cdot \mu \cdot (L_m + L_c)} \quad (12)$$

ろ過面積当り流量計算式

$$L_c = \alpha_c \cdot C \cdot v \quad (13)$$

ケーキ層相当円管長さ と 流量・粒子濃度関係式  
 $\alpha_c$  : ケーキ引抵抗 (m<sup>3</sup>/kg)

(13) 式を (12) 式に代入して計算を進めることにより、ケーキろ過式が得られる。定流量ろ過での差圧  $\Delta P$  とろ液量  $v$  の関係を (14) 式に、定圧ろ過での流量  $J$  とろ液量  $v$  の関係を (15) 式に示した。(14) 式より定流量ろ過では  $\Delta P$  と  $v$  の関係が直線となることがわかる。(15) 式より定圧ろ過では  $1/J$  と  $v$  との関係が直線となることがわかる。これを図10に示した。

$$\Delta P = \Delta P_0 \cdot (1 + K_c \cdot v) \quad (14)$$

定流量ろ過条件  
 $K_c$  : 閉塞係数 (1/m)

$$J = J_0 \cdot \frac{1}{(1 + K_c \cdot v)} \quad (15)$$

定圧ろ過条件

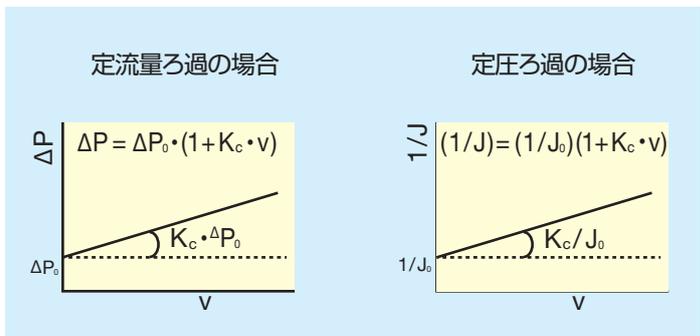


図10：ケーキろ過でのろ液量  $v$  と差圧  $\Delta P$ 、流量  $J$  の関係

以上のように、4つのモデルと定流量、定圧ろ過条件での閉塞の式を示した。次に閉塞の式が実際のろ過結果にあてはまる例を紹介する。

### 3. 閉塞モデル式のろ過結果への適用

#### 1) 完全閉塞

孔構造が単純で表面で異物を捕捉するフィルターに対して、孔を完全に塞ぐ異物が多数存在する流体を通液したときに見られる閉塞である (図1、図2参照)。図11に、ゲルを含む紫外線硬化モノマーをトラックエッチメンブレン (直径  $1 \mu\text{m}$  の円形の孔を有する) により定圧ろ過した時の、ろ液量  $v$  に対する流量  $J$  の減少を示した。流量は直線的に低下し、完全閉塞モデル式が適用できた (図3の右図参照)。直線の勾配から閉塞係数が求められた。同様のゲルを含む他のモノマー液のろ過を行い、閉塞係数を求めることにより各モノマー中のゲルの量を比較するという活用方法も考えられる。

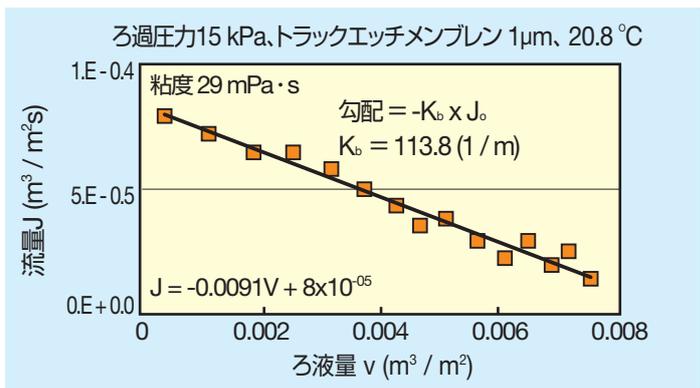


図11：完全閉塞モデル式を適用した例  
 ゲルを含む光硬化モノマーの定圧ろ過



## 2) 標準閉塞

図12に、未溶解ポリマーを含むメチルセルロース水溶液を、ナイロン66製メンブレンフィルターにより定圧ろ過した時の、ろ液量 $v$ に対する流量の平方根 $\sqrt{J}$ の低下を示した。 $\sqrt{J}$ は直線的に低下し標準閉塞の式があてはまる(図5の右図参照)。標準閉塞のモデルは図4に示したとおり、孔の内部で均一に粒子が捕捉され堆積するものであるが、閉塞したフィルターは表面の大部分が未溶解ポリマーの膜で覆われており、表面で閉塞していた<sup>2)</sup>。標準閉塞の場合、閉塞モデル式が適用できても、実際の閉塞状態はモデルと必ずしも一致しない。閉塞状態を誤って解釈することがないよう、この点は注意を要する。

直線の勾配から閉塞係数が求められた。このメチルセルロース水溶液では、異なるろ過圧力、異なるフィルター(プロピレン製不織布フィルター、グラスファイバー製不織布フィルター)を用いてろ過しても標準閉塞モデル式が同様に良くあてはまり<sup>3)</sup>、閉塞係数を比較することにより、ろ過圧力の影響、フィルター間の特性の違いを量的に把握できた。標準閉塞モデル式は、ゲルを含む流体、懸濁液、分散液のろ過に適用された例がある。

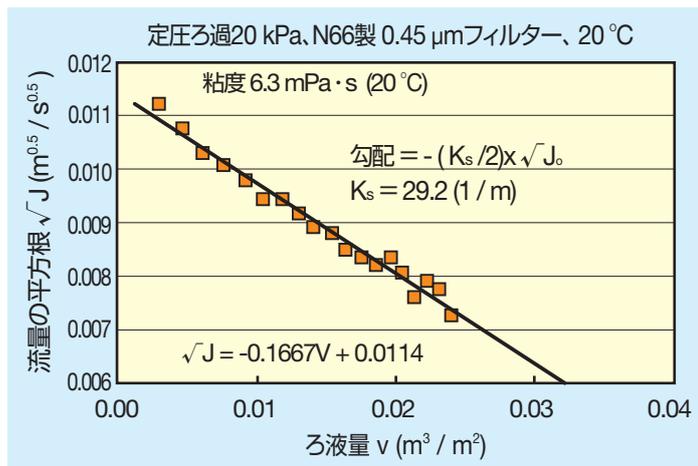


図12：標準閉塞モデル式を適用した例  
溶解ポリマーを含むメチルセルロース溶液の定圧ろ過

## 3) 中間閉塞

図13に、未溶解ポリマーを含むポリビニルブチラール溶液を、ナイロン66製メンブレンフィルターを用いて定圧ろ過した時の、ろ液量 $v$ に対する流量の自然対数 $\ln(J)$ の低下を示した。 $\ln(J)$ は直線的に低下し、中間閉塞モデル式があてはまる(図7の右図参照)。閉塞したフィルター表面および内部に未溶解ポリマーの膜で覆われた部分が見られた。中間閉塞のモデルは図6に示したとおり、異物が閉塞部、開口部を区別せず一様に堆積するものであるが、実際の閉塞がモデルの機構に従い進行したかは明らかでない。フィルターは図12で示した標準閉塞の例で用いたものと同じ種類

であるが、同様に未溶解ポリマーを含む液をろ過しても、異なる閉塞パターンを示すことがある。中間閉塞モデル式を適用した例は多く、ゲルを含む流体、懸濁液、井水、川水、食品用抽出液、糖液のろ過等が挙げられる。

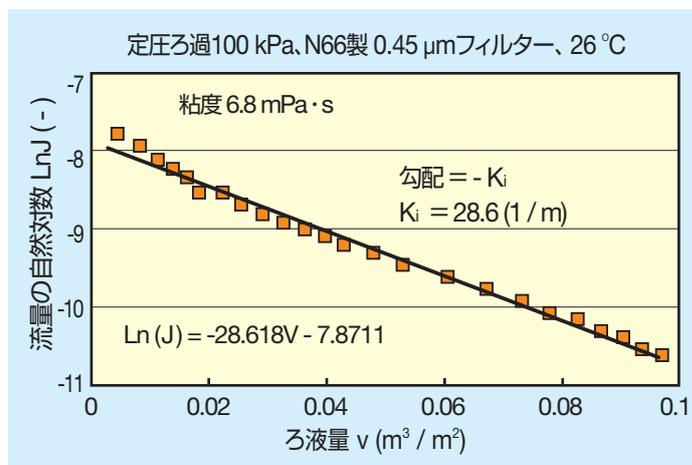


図13：中間閉塞モデル式を適用した例  
未溶解ポリマーを含むポリビニルブチラール溶液の定圧ろ過

## 4) ケーキろ過

図14に、シリカダスト懸濁液を、ポリプロピレン製不織布フィルターを用いて定流量ろ過した時の、ろ液量 $v$ に対する差圧 $\Delta P$ の上昇を示した。ろ過初期を除き $\Delta P$ は直線的に上昇しており、この部分にケーキろ過モデル式があてはまる(図10の左図参照)。ろ過後のフィルターには実際にケーキ層が形成されており、図8に示したモデルに近い機構で閉塞が進行したと考えられる。ただし、ろ過初期はケーキ形成途中でろ材の孔閉塞が含まれるため、直線関係から外れている。ケーキろ過モデル式は、固形物を多く含む流体のろ過において広く適用され、実際にケーキ層が形成されている。

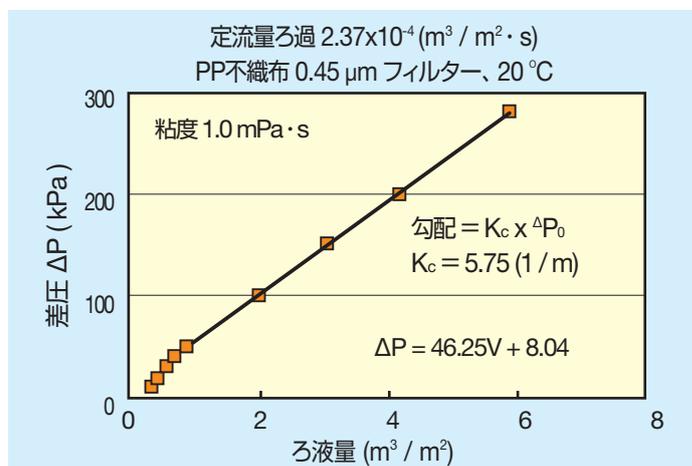


図14：ケーキろ過モデル式を適用した例  
シリカダスト懸濁液の定流量ろ過



## 4. おわりに

以上、閉塞モデルの説明および閉塞モデルが単純にあてはまるろ過結果をいくつか紹介した。閉塞モデルにより、労力を費やして得られたデータをより有効に活用する一助になれば幸いである。

なお、ろ過では閉塞機構が推移することが多くあるが（標準閉塞→ケーキろ過等）、このようなデータの解析方法も示されている<sup>2)</sup>。あるいは、いずれの閉塞モデルもあてはまらないろ過結果が多くあるが、これらをより一般的に解析する方法も提案されている<sup>4)</sup>。紙面の都合上割愛したので、参考文献に示した。

### 参考文献

- 1) Hermans, P. H. and H. L. Bredée: "Principles of the Mathematical Treatment of Constant-Pressure Filtration", J. Soc. Chem. Ind. , **55T**, 1-4(1936)
- 2) Grace, H. P. : "Structure and Performance of Filter Media", AIChE J. , **2**(3), 307-336(1956)
- 3) 角屋正人, 沼口徹: "メチルセルロース水溶液のゲル状未溶解高分子除去に対するろ過圧力の影響", 化学工学会第39回秋季大会研究発表講演要旨集, A208 (2007)
- 4) Iritani, E. , N. Katagiri, Y. Sugiyama: "Analysis of Flux Decline Behaviors in Filtration of Very Dilute Suspension", AIChE J. , **53**(9), (2007)

### お問い合わせ

詳しい内容につきましてご質問がありましたら、下記までお問い合わせください。

**【マイクロエレクトロニクス事業部】 TEL.03-6901-5700**