加圧溶解法により発生したマイクロバブルの 水中への酸素供給効果に関する研究*

Study on Oxygen Supplying of the Micro-Bubbles Generated
by the Pressurizing Dissolution Method

山田 哲史[†] 吉見 裕子^{††} 寺田 隆史^{**}
YAMADA Satoshi YOSHIMI Yuko TERADA Takashi
大野 健一[‡] 南川 久人^{‡‡}
OHNO Kenichi MINAGAWA Hisato

Abstract Recently, micro-bubbles are generated by some methods and used at various situations. However, physical characteristics for micro-bubbles are not understood very well. In this study, micro-bubbles generated by the pressurizing dissolution method are compared with those generated by the shear method, and the relation between some bubble size populations and their effects of oxygen supplying are discussed. We found that the bubbles generated by the pressurizing dissolution method, which are very small, have advantageous to the effect of oxygen supplying at the same air flow rate, but it is not so effective considering the flow rate through the interfacial area of bubbles. We also presented the relation between four parameters and the overall volumetric mass transfer coefficient.

Keywords: Micro-bubble, Dissolved oxygen, Pressurizing dissolution method

1. はじめに

近年、マイクロバブルが大きな注目を集めている。船舶の摩擦抵抗低減 [1, 2] から、養殖産業 [3] や水質浄化 [4]、医療分野 [5] に至るまで、幅広い展開を見せている。その展開にともなって、さまざまな生成方法も開発されてきている。しかしながら、種々の装置で発生した種々の大きさの気泡

群がどのような特性を持っているのか、その詳細については、あまり明らかにされてきていない。

これまで著者らは、直管内壁部に空気自吸引機構を有する気液せん断方式 (以下、気液せん断方式) による微細気泡発生装置を用いて、発生する気泡群と水中への酸素供給効果の関係に関する諸研究を行い、微細な気泡の物質移動に対する有用

*2006.10.3 受付

[†]滋賀県立大学 〒522-8533 滋賀県彦根市八坂町 2500
TEL (0749)28-8385 FAX (0749)28-8492

^{††}滋賀県立大学工学部 (現、TOWA 株式会社)

^{**}滋賀県立大学大学院工学研究科

[‡]滋賀県立大学工学部 (現、トヨタテクニカルディベロップメント株式会社)

^{‡‡}滋賀県立大学工学部

Fig. 1 Experimental apparatus.

性を示してきた [6, 7]。本研究では、加圧溶解法によるマイクロバブルに注目し、この気泡群の生成に関する特徴と、物理的特性として気泡群による水中への酸素供給効果について検討する。加えて気液せん断方式による気泡群と比較し、それぞれの気泡群と酸素供給効果の関係から、生成方法による酸素供給効果についての物理的特性の相違を述べる。

2. 実験装置・実験方法

Fig. 1 は、加圧溶解法によるマイクロバブル発生システム及びその実験装置の概略図である。以下に、実験装置及び流れの概要を述べる。

図のように水槽から取水し、ポンプを通して最終的に同じ水槽へ放出する循環配管系を形成した。その主水槽は、容積約 2m^3 の容量がある。比較検討のために、この他に容積約 0.1m^3 の水槽も用いた。また、実験中において水温を一定 ($20 \pm 1^\circ\text{C}$) に保つため、恒温水循環装置を設置し、この装置の攪拌機能により温度を均一に、また水中溶存酸素濃度を均一に保った。

気液混合は、ポンプ駆動時に、ポンプ上流側にて吸い込み圧を利用した自吸式にて行う。これにより、ポンプ直前で空気が管内に取り込まれ、水と空気が混ざり合いながらポンプにより押し流されて、流下していく。

水槽直前の最下流部にある放出ノズル部は、その流路断面積が非常に小さいために、ノズル上流部はその背圧の影響を受け、高圧となる。これを利用して水への酸素の溶解を促進させる。このとき、大気圧下における空気中の酸素飽和濃度よりも、多くの酸素が溶け込むこととなる。不要な空気は、流速を緩慢にした一時滞留部において分離し、放出する。一時滞留部を過ぎた流れは、見か

け上ほとんど気泡を含んでおらず、ほぼ液相のみである。最後に、放出ノズルを経て圧力開放されることで、加圧状態で溶解していた空気が、大気圧下で溶解できなくなって再気泡化する。これが、非常に小さな気泡群となって現れる。

本研究では、水体積流量 Q_L 、水槽放出の空気体積流量 Q_G 、ポンプ出口圧力 P_{out} をパラメータとし、種々条件による気泡群とその酸素供給効果の関係について、気泡径の分布形と貧酸素状態からの溶存酸素濃度の時間変化から、実験的に検討した。気泡径は、マクロレンズ、CCD カメラ、デジタルビデオカメラ、幅 $40\text{mm} \times$ 奥行き 10mm の撮影用矩形断面流路から構成される光学撮影系を用いて取得したビデオ映像より静止画像を抽出し、その画像から計測した。貧酸素状態からの溶存酸素濃度増加を測定するときには、あらかじめ水槽内の水に窒素ガスを放出し接触させて、水中溶存酸素濃度を減じた。対象流体として、液相には水道水を、気相には空気をそれぞれ用いた。

測定対象のうち、気泡径とその分布形については、その代表値としてザウター平均径 d_{32} 及び気泡径のばらつきを示す標準偏差 σ を測定値から算出し、さらにはザウター平均径 d_{32} と空気体積流量 Q_G との関係

$$S_{IAR} = \frac{6Q_G}{d_{32}} \quad (1)$$

から、気液界面積流量 S_{IAR} を求めた。これは、単位時間当たり発生する気泡群による気泡界面積を表している。酸素供給効果については、貧酸素状態からの溶存酸素濃度の時間変化を、気泡を供給している間、溶存酸素濃度が上がらなくなるまで測定し続け、その濃度変化を用いて後述の式 (3) に当てはめ、総括物質移動容量係数 $K_L a$ を得た。

3. 実験結果・考察

3.1 加圧溶解法による気泡群

Fig. 2 に、各条件における発生気泡の分布を示す。水体積流量 Q_L 、空気体積流量 Q_G 、ポンプ出口圧力 P_{out} をさまざまに変化させた流動条件で測定しているが、いずれの条件においても、ピーク径はほぼ $40 \sim 50\mu\text{m}$ 程度、大きな気泡でも直径 $100\mu\text{m}$ 前後のものまでしかないことがわかる。また後で示す Fig. 5 からわかるように、ザウター平均径 d_{32} は $40 \sim 60\mu\text{m}$ 程度、ばらつきを示す標準偏差は数 $\mu\text{m} \sim 20\mu\text{m}$ 程

Fig. 2 Probability density function of the diameter of micro-bubbles.

Fig. 3 Temporal development of the dissolved oxygen concentration.

度であり、大きさの揃った小さな気泡群が発生していることがわかる。

3.2 加圧溶解法による水中への酸素供給効果

このような気泡群により水中への酸素供給実験を行った結果が、Fig. 3 である。空気体積流量 Q_G が大きいほう (● ■ ▲ などの中点付き印) が立ち上がりはやく、小さいほう (○ □ △ などの中点無し印) がゆっくりと立ち上がっていることがわかる。その他、水体積流量 Q_L の変化 (○ などの丸印 → □ などの四角印 → △ などの三角印) やポンプ出口圧力 P_{out} の変化 (○ などの小さな印

Fig. 4 Relation correlation of the overall volumetric mass transfer coefficient with air flow rate and interfacial area rate.

→○などの大きな印) には、あまり影響を受けていないこともわかる。これは、種々の流動条件を設定したもの、空気体積流量以外には気泡に関する値 (例えば、気泡径やそのばらつきなど) に大きな相違が見られないためであると考えられる。

3.3 加圧溶解法による気泡群と水中への酸素供給効果の関係

水槽に気泡群を供給するとき、対象とする気体の時間軸での溶存濃度曲線は、

$$\frac{\partial c}{\partial t} = K_L a (c^* - c) \quad (2)$$

から得られる

$$c = \{1 - \exp(-K_L a t)\} c^* \quad (3)$$

によく一致する [6]。ここで、 c は注目する溶存気体の濃度、 c^* は平衡濃度である。例えば本研究においては、 c は溶存酸素濃度、 c^* は平衡酸素濃度である。このときの $K_L a$ を総括物質移動容量係数といい、以下、酸素供給効果の指標として用いることとする。実際には、実験結果の時刻と濃度を式 (3) に当てはめ、Fig. 3 に示したような近似曲線を得ることで、総括物質移動容量係数 $K_L a$ を得る。

ここで、空気体積流量及び水槽に放出された気泡群の気液界面積流量と総括物質移動容量係数との関係を Fig. 4 に示す。図からもわかるように、空気体積流量やその界面積流量が大きくなるにつ

Fig. 5 Sauter mean diameter of bubbles versus standard deviation of their bubble diameters.

れて、総括物質移動容量係数が大きくなっており、酸素を水中に供給する効果が増している。

このような特徴を持つ、加圧溶解法で生成したマイクロバブル群と、それより大きな気泡を持つ気液せん断方式で生成したマイクロバブル群による酸素供給効果を、以下に比較していく。

4. 加圧溶解法と気液せん断方式によるマイクロバブルの特性比較

4.1 発生する気泡群の特徴

種々の気泡発生方式を比較するものとして、発生する気泡群の大きさとそのばらつき関係を示したものが、Fig. 5 である。本研究で行った加圧溶解法における気泡群の結果のほか、気液せん断方式による2種類の装置から発生させた気泡群の結果 [6, 8] もあわせて示している。なお図中の線は、標準偏差がザウター平均径 d_{32} と単純に1乗の比例関係にあると仮定し、気液せん断方式における結果 (○) で近似させたものである。

この図からわかるように、加圧溶解法による気泡群は、気液せん断方式による気泡群と比べて 1/20 ~ 1/40 程度のザウター平均径 d_{32} を持ち、非常に小さな気泡群であることがわかる。また、気泡の大きさのばらつきを示す標準偏差は、気液せん断方式のものに比べて相対的に小さく、加圧溶解法による気泡群は、気泡そのものの大きさが小さく、かつ気泡の大きさのばらつきが小さな気泡群であることが、このことからいえる。

Fig. 6 Air flow rate versus overall volumetric mass transfer coefficient.

4.2 気泡群の諸量と総括物質移動容量係数

加圧溶解法及び気液せん断方式における気泡群で行った酸素供給実験における、空気体積流量と総括物質移動容量係数との関係を、Fig. 6 に示す。また図中に示された線は、総括物質移動容量係数 $K_L a$ が空気体積流量 Q_G の1乗に単純に比例すると仮定した場合を、気液せん断方式の結果 (○) により近似させたものである。後述する水槽の貯水深及びその体積による影響を検討するため、水槽の貯水深 L_D 及び水槽の水面面積 A_T により分類し、体積については $V_T = A_T L_D$ と両者の積として考えることとする。

ここで、これらのうち水深 $L_D = 750$ mm のデータ (○ □) に注目すると、気液せん断方式で生成した気泡群による酸素供給効果に起因する総括物質移動容量係数よりも加圧溶解法による気泡群の方が、等空気体積流量を考えると、空気体積流量の割には高い総括物質移動容量係数を持つといえる。これは、空気が細かく砕かれていることから気液の接触面積が大きくなり、気泡から水中への酸素溶解が促進されるからと考えられる。

また、同じ加圧溶解法により行った実験のうち、水深が異なる2種類 (□ ■) を比較すると、同程度の空気体積流量 Q_G を有する条件においては、総括物質移動容量係数 $K_L a$ はほぼ同じ程度である。これは、水深が浅くなっただけ気液接触のための時間が短くなり酸素供給効果としては減少するが、貯水体積も同時に減っているために酸素供給効果が上昇し、同程度の総括物質移動容量係数になったものと考えられる。

Fig. 7 Sauter mean diameter of bubbles versus overall volumetric mass transfer coefficient.

Fig. 8 Interfacial area rate of bubbles versus overall volumetric mass transfer coefficient.

生成された気泡群のザウター平均径と総括物質移動容量係数との関係を Fig. 7 に示す。図中に示された線は、総括物質移動容量係数 $K_L a$ がザウター平均径 d_{32} の -1 乗に単純に比例すると仮定した場合を、気液せん断方式の結果 (○) により近似させたものである。

例えば、加圧溶解法による実験結果のうち、水面面積の異なる 2 種類 (■ ■) について比較すると、同じ水深 ($L_D = 400\text{mm}$) であるにもかかわらず、その酸素供給効果が大きく異なる。Fig. 7 に示したように、加圧溶解法による気泡群のザウター平均径 d_{32} はほとんどかわらず、総括物質移動容量係数 $K_L a$ の相違は、ほぼ対象となる水の体積 ($\cong V_f$) に依存していると考えられる。

このように、同じようなザウター平均径を持つ

ている加圧溶解法においても、その条件の違いによりさまざまな総括物質移動容量係数の値をとっており、ザウター平均径だけでは、酸素供給効果を評価することができないことを示している。

Fig. 8 は、供給した気泡群による気液界面積流量と総括物質移動容量係数との関係を示したものである。図中に示された線は、総括物質移動容量係数 $K_L a$ が気液界面積流量 S_{LAR} の 1 乗に単純に比例すると仮定した場合を、気液せん断方式の結果 (○) により近似させたものである。

例えば、水深 750mm のデータ (○ □) について気液界面積流量を基準とすると、加圧溶解法による気泡群の酸素供給効果はそれほど高くないことがわかる。

4.3 総括物質移動容量係数を支配する要素

小さな気泡が大きな気泡よりも物質移動の点で有利になることには、自身の体積の小ささゆえ単位体積あたりの気液界面積が大きくなり気液接触機会が増すこと、上昇速度が非常に緩慢であること、加えて非常に気泡が小さくなった場合には、表面張力による自己加圧効果による近傍液相との平衡濃度の変化といったものが考えられる。

逆に不利な働きともとれるものは、発生した気泡群による気液界面積と酸素供給効果との関係である。小さな気泡では、単位体積あたりの気泡表面積は大きくなり、溶解促進が図られ有利になると考えられることは先に述べたとおりであるが、同時に単位表面積あたりの気泡体積は小さくなる。すなわち、接触機会が大きいゆえに溶解促進が図られるはするものの、溶解する気体そのものがとけきってしまい、ある時点では大きな気泡表面積を持っていたとしても、その効果を発揮するための気泡中の気体が液相滞在中に溶解してしまい、その後仮想的に脱気するまでは、体積が存在しないという状態と考えられるからである。これは、水深が大きい場合には特に顕著に現れるものと考えられる。なぜならば、浅い水槽の場合であれば気泡の大小にかかわらず溶解し切る前に空気中へ脱してしまうであろうが、深い水槽であれば小さな気泡は上昇途中に溶解し切ってしまうことも考え得るからである。

これらの要因を考えると、総括物質移動容量係数の大小に影響する要素としては、供給する気泡群の流量及び気泡群分布形などに起因する気液接触面積流量とその接触時間、系の液相体積、さら

には滞留槽などにおける深さなどが考えられる。すなわち、気泡群そのものの特性による影響と系そのものによる影響が組み合わさったものが、総括物質移動容量係数として現れているものと考えられる。

ここでは比較のため、気泡群のザウター平均径がいずれの条件においても大差ない加圧溶解法の結果 (□ ■ ●) についてみていくこととし、改めて空気体積流量と総括物質移動容量係数との関係 (Fig. 6) 及び気液界面積流量と総括物質移動容量係数との関係 (Fig. 8) について、各水槽貯水条件を横断して検討する。

$L_D = 750\text{mm}$, $A_T = 2.54\text{m}^2$ (□) と $L_D = 400\text{mm}$, $A_T = 2.54\text{m}^2$ (■) を比較すると、両者の総括物質移動容量係数にはあまり差がないことがわかる。また、 $L_D = 400\text{mm}$, $A_T = 2.54\text{m}^2$ (■) と $L_D = 400\text{mm}$, $A_T = 0.258\text{m}^2$ (●) を比較すると、およそ 10 倍程度の総括物質移動容量係数の違いがあることがわかる。

これらは、水深の違いによる気泡上昇区間の増減に起因する気液接触時間の相違や、系の水体積の違いに起因する総括物質移動容量係数に含まれる気液混合単位体積あたりの気液界面積 a の相違によるものと考えられる。

これらを踏まえ、総括物質移動容量係数に対して、気液接触界面積に影響を与える水槽放出の空気体積流量、気液接触界面積及び気泡上昇速度すなわち気液接触時間に影響を与える気泡のザウター平均径、気液界面積濃度に影響を与える水体积 (水体积の大半を占める水槽貯水量で近似)、気泡の気液接触時間に影響を与える水槽水深の、四つのパラメータに注目して重回帰分析し、回帰分析による関数から導いた総括物質移動容量係数の推定値を得た。液相が完全に混ざり合うことができる場であると仮定すると、本研究における実験結果から得られた回帰関数は、

$$\ln K_L a = -2.6 + 0.62 \ln Q_G - 2.1 \ln d_{32} - 0.87 \ln V_T + 0.30 \ln L_D \quad (4)$$

となった。ただし、ここでの各パラメータは全て SI 単位系に準じた $K_L a$ [1/s]、 Q_G [m³/s]、 d_{32} [m]、 V_T [m³]、 L_D [m] の単位を有し、温度一定 (20℃) とする。なお、式 (4) の適用範囲は、本実験の条件範囲で、液相の完全な混合が仮定できるような閉鎖系であるものとする。実験結果による総括物質移動容量係数とこの回帰式により算出した推定値

Fig. 9 Experimental and estimated values of the overall volumetric mass transfer coefficient.

Table 1 Standard partial regression coefficient

Q_G	0.966
d_{32}	-0.319
V_T	-1.09
L_D	0.0949

との関係は、Fig. 9 に示す通りである。

データの二乗平均平方根は対数ベースで約 0.04% と非常に小さな値となっている。重相関係数は $R = 0.984$ と 1 に近いので、四つのパラメータにより総括物質移動容量係数をよく表しているといえる。また、標準偏回帰係数は Table 1 に示す通りである。

この標準偏回帰係数より、本実験の範囲内においての総括物質移動容量係数への影響度は、

$$V_T \gtrsim Q_G > d_{32} > L_D$$

であるといえる。

5. おわりに

本研究では、加圧溶解法によるマイクロバブル群の気泡の分布形及びその酸素供給効果の実験的研究を中心に、気液せん断方式による気泡群の特性などと比較して、マイクロバブル群と生成方法の違いあるいは気泡群の違いによる特性への影響を検討した。貯水深 750mm の水槽での実験では、気液せん断方式による気泡群に比べ加圧溶解法に

よる気泡群は、空気体積流量の視点では相対的に総括物質移動容量係数が大きい、気液界面積流量の視点では相対的に総括物質移動容量係数が小さいことがわかった。これは、貯水槽の水深や水面面積の影響を受けるためだと考えられ、さらに詳しくその影響を、気泡の空気体積流量、気泡のザウター平均径、水槽貯水量、水槽水深の四つをパラメータとして検討したところ、気泡の空気体積流量及び水槽貯水量が最も大きな影響を与えていることがわかり、これら四つのパラメータを用いた関数として、総括物質移動容量係数を表すことができた。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、滋賀県立大学工学部機械システム工学科卒業研究生として、実験装置の製作を手伝って頂いた川田陽介氏(現・須河車体株式会社)、追加実験を手伝って頂いた千原亮介氏・西村健史氏・美馬興己氏に、この場を借りて感謝の意を表します。

Nomenclature

Q_L : water volume flow rate	[l/min]
Q_G : air volume flow rate	
into a tank	[l/min]
P_{out} : pressure at pump output	[MPa]
S_{IAR} : flow rate through	
the interface of micro-bubbles	[m ² /s]
$K_L a$: overall volumetric	
mass transfer coefficient	[1/s]

L_D : net depth of water in a tank	[mm]
A_T : water surface area in a tank	[m ²]
V_T : volume of water in a tank	[m ³]

参考文献

- [1] Kodama, Y., On the Skin Friction Reduction Mechanism of Microbubbles, proc. of ASME FEDSM'03, 4th ASME JSME Joint Fluid Engineering Conference, CD-Rom FEDSM 2003-45643, (2003).
- [2] 大石 義彦・ほか 3 名, 気泡を含む水平チャネル乱流の壁面摩擦抵抗(気液界面挙動と局所せん断応力の同期計測実験), 機論 B, **71**(706), 1542-1549(2005).
- [3] 大成 博文, 小さな気泡の工学的な応用, 混相流, **18**(4), 324-331(2004).
- [4] 道奥 康治・ほか 5 名, 曝気形態と貯水池深層水質との関係について, 水工学論文集, **46**, 1091-1096(2002).
- [5] 池田 貞一郎・吉澤 晋・松本 洋一郎, 結石破碎における収束超音波の伝播挙動, 日本機械学会流体工学部門講演会論文集, p.43 (CD-Rom: No. 403), (2001).
- [6] 山田 哲史・天野 誉之・南川 久人, 微細気泡群の分布と水への酸素供給効果との関係に関する研究, 機論 B, **71**(705), 1301-1306(2005).
- [7] 山田 哲史・南川 久人, 微細気泡による大深度水域への酸素供給とその推定モデルの構築, 混相流, **19**(4), 344-351(2005).
- [8] 南川 久人・ほか 5 名, 流路急拡大法による微細気泡発生機構の検討, 日本混相流学会年会講演会 2001 講演論文集, 127-128(2001).