上昇する球形気泡の溶解過程に関する研究*

竹村 文男^{*1}, 矢部 彰^{*1}

Dissolution Process of a Spherical Rising Gas Bubble

Fumio TAKEMURA and Akira YABE

Dissolution process of a spherical rising gas bubble was investigated experimentally and numerically. We developed an experimental apparatus in which a CCD camera with a microscope follows the rising bubble and used it to precisely estimate the Sherwood number for the dissolution of the bubble below Reynolds number of 100 by measurement of the bubble size and the rising speed. We also estimated numerically Sherwood number for a dissolution of a gas bubble in an infinite liquid by directly solving a diffusion equation using the velocity distribution which we have already calculated in the previous work. The experimental results agree well with the numerical results. Moreover, we compared the experimental results with several proposed equations for estimating Sherwood number and determined the region of applicability of each equation.

Key Words: Bubble, Multi-Phase Flow, Dissolution, Diffusion, Sherwood number, Low Reynolds Number

1. はじめに

エネルギー有効利用の推進のための化学エネルギーを利用する熱輸送が近年注目されており、その重要な構成要素として液相化学反応が提案されている。液相反応においては、反応ガスの溶解過程が反応律速となることが多く、その溶解促進技術が重要となる。従来、溶解促進においては、かくはん機などの動力を用いる場合が多いが、このかくはん動力を抑えるためにサブミリオーダーの気泡直径をもつマイクロ気泡を活用すれば、その体表面積が大きいことから、大きな動力を用いずに溶解促進が可能となる。このとき、液体中の気泡の溶解速度の評価は溶解促進効果を評価するうえで重要となる。特に、水程度の粘性をもつ溶液ではサブミリオーダーの気泡はほぼ球形を保つことから、上昇球形気泡の溶解速度の評価は重要である。

上昇球形気泡の溶解過程に関する研究は、理論的、実験的に古くから行われており、Clift⁽¹⁾らによってよくまとめられている。理論的には、Lochielら⁽²⁾が、境界層近似を用いて気泡溶解に対する Sh 数を気泡表面の速度分布を用いる形で解析的に求めている。この

式に、解析的あるいは数値的に求めた速度分布を代入することにより、高 Sc 数の場合における Sh 数を計算できる。Oellrichら⁽³⁾は、解析的あるいは数値的に求めた速度分布を用いて拡散方程式を数値的に解いて、気泡周りの濃度場を求めている。

一方、実験的研究においては、Leonardら⁽⁴⁾が、密封した液体中にある気泡が体積変化をする際に、圧力を一定に保つためにテストセルの底面にある毛細管内の水銀柱が移動する実験装置を考案し、その移動距離から気泡径の変化を測定し、水中におけるガス気泡の溶解速度を測定している。また、同様の装置を用いて Redfieldら⁽⁵⁾が、広い範囲の Sc 数、 Re 数に対して溶解速度を測定し、 Sh 数で整理した。Calderbankら⁽⁶⁾は、液体を満たした密封容器の中を上昇する気泡は溶解によって体積変化をせず、容器内の圧力が変化することを利用して、気泡の溶解速度を測定している。Brankovicら⁽⁷⁾は、Laser-Dopplerを用いて、気泡の上昇速度と気泡径を同時に測定するシステムを考案した。彼らは、ほぼ同じサイズの気泡を連続的に放出し、テストカラムを上下に移動させながら異なる位置での気泡径と上昇速度を測定し、時間の変化を位置の変化に置き換えて気泡の溶解速度を測定している。しかしながら、液体を密封した容器を用いた実験では上昇速

* 原稿受付 1997年6月5日。

^{*1} 正員、機械技術研究所 (〒305-8564 つくば市並木1-2)。

度と気泡径の同時測定に対する精度は悪く, Laser-Doppler を用いた測定は測定位置での上昇速度と気泡径の測定精度は高いが, 放出される気泡径の精度が誤差として大きく, 数値計算結果との比較は難しい。したがって, 気泡の溶解速度に対するより精度のよい実験が求められている。

著者らは⁽⁸⁾, 液体中のガス気泡の上昇速度を精度よく測定するために, 液体中を上昇する気泡に顕微鏡付きのカメラを追従させる実験装置を新たに考案し, 広い範囲の Re 数に対する抵抗係数を5%以内の精度で評価した。また, 無限流体中を上昇する球形気泡に関する数値解析を行い, 抵抗係数について実験結果と良好に一致した。本研究では, 上昇気泡の溶解速度を精度よく評価するために, 液体中を上昇する気泡に顕微鏡付きのカメラを追従させる実験装置を用いて, シリコンオイル中を上昇する酸素気泡の上昇速度と気泡径を同時測定した。さらに酸素のシリコンオイル中の溶解度と拡散係数を測定し, 上昇速度と気泡径変化速度と合せて実験結果を Re 数と Sc 数をパラメータにして Sh 数で整理した。また, 上昇気泡の溶解過程に関する数値解析を行い, 実験結果と良好に一致することを示した。さらに, いくつかの気泡溶解速度の推算式との比較を行い, それらの精度を検討した。

2. おもな記号

- c : 濃度
- D : 拡散係数 mm^2/s
- H : ヘンリー定数 Pa
- p : 圧力 Pa
- Pe : ペクレ数 $=2RU/D$
- R : 気泡半径 mm
- $\mathcal{R}$: 気体定数 J/kg/K
- Re : レイノルズ数 $=2RU/\nu$
- r : 半径方向座標 mm
- Sc : シュミット数 $=\nu/D$
- Sh : シャーウッド数 $=aR/D$
- T : 温度 K
- t : 時間 s
- U : 気泡の上昇速度 mm/s
- u : 速度 mm/s
- x : 液膜方向長さ mm
- y : 半径方向計算座標
- α : 物質伝達率 mm/s
- ν : 液体の動粘性係数 mm^2/s
- θ : 接線方向座標
- ρ : 密度 kg/m^3

添 字

- g : 気相
- i : 初期状態
- l : 液相
- s : 気液界面
- $*$: 無次元
- ∞ : 無限遠

3. 上昇気泡の溶解過程に関する実験

3・1 気泡溶解速度測定実験 図1に気泡の気泡溶解速度測定実験装置を示す。本実験装置は, テストセクション, 気泡発生部, シリコンオイル貯蔵用タンク, 半導体圧力センサ(Kulite社製, XTM-190)と直流増幅器(TEAC社製, SA-58), 液中酸素濃度計(オートマチックシステムリサーチ社製, FO-960), 真空ポンプ, かくはん機, 液体ポンプと, 顕微鏡, CCDカメラ, ビデオ装置を用いた測定系, 光学用 z 軸テーブル, ステージコントローラ, ビデオ入出力用ボードおよびそれらを制御するパーソナルコンピュータなどの制御系からなる。

テストセクションは縦40 mm, 横40 mm, 高さ500 mmのガラス製の矩形パイプである。テストセクションの下部には, 気泡発生装置が取付けてある。気泡発生装置の内部圧力は圧力計により液体底面の圧力よりも0.5 kPa程度高い状態に保たれており, 電磁弁と同じメカニズムを用いることで単一気泡を生成できる。なお, 発生部孔径は約40 μm である。シリコンオイル貯蔵用タンクは, テストセクションに導入されるシリコンオイル中の酸素濃度を設定するために用い,

Fig. 1 Schematic of the experimental apparatus

濃度の設定は圧力で行い、補助的に側面に取付けた酸素濃度計を用いる。顕微鏡付きの CCD カメラは z 軸ステージに取付けられ、速度制御を行うことで、気泡に追従できるようになっている。カメラの速度制御は、気泡の画像を画像入出力ボードを通してパーソナルコンピュータに 30 フレーム/s で取り込み、画像を二値化することによりフレームごとの気泡の位置を検出し、2 枚の画像から気泡とカメラとの相対速度を割り出し、その相対速度に応じて z 軸ステージのステップモータの駆動周波数を変化させることで行う。

実験は、ブース内で行い、空調を行いながら室温を管理した。実験においては、広範囲のレイノルズ数をカバーするため、動粘度が約 $1 \text{ mm}^2/\text{s}$ から $50 \text{ mm}^2/\text{s}$ までの 6 種類のシリコンオイルを用いた。また、実験は表 1 に示す条件で行った。

実験は、以下のようにして行った。シリコンオイルを貯蔵用タンクに導入し、溶解していた空気を十分脱気した後、純酸素を所定の圧力までシリコンオイル中に溶解させ、そのときの濃度を酸素濃度計を用いて測定する。溶解させたシリコンオイルをテストセクションに液体ポンプを用いて導入する。気泡発生部内の圧力を設定し、気泡溶解実験を 5 回程度行った。実験終了後、速やかにテストセクション内の酸素濃度を酸素濃度計で測定し、酸素濃度に変化がないことを確認した。さらに、二重円筒式の回転粘度計を用いて粘性係数を測定し、密度を重量計を用いて測定し、動粘度を算出した。また、気泡径と上昇速度の測定は録画した画像と実験開始時からのカメラの速度変化の記録を用いて行う。気泡径はカメラを 1 フレームごとに測定する。速度については、精度を高めるために 1 フレームごとの気泡の重心位置を測定し、2 枚の面像の重心位置の差から相対速度を割り出し、そのフレームの時間に相当するカメラの速度と合せて、気泡の絶対速度を計算した。

図 2 に上昇する単一気泡が溶解する過程を、カメラを気泡に追従させながら撮影した画像を示す。液体温

度は 23°C 、大気圧は 100.8 kPa 、動粘度は $1.14 \text{ mm}^2/\text{s}$ 、酸素濃度設定圧力は 86 kPa である。初期気泡径は、 0.321 mm 、初期上昇速度は 130 mm/s で、本実験結果においてもっとも Re 数が高い場合の結果である。図 2 より、どの画像においても気泡の輪郭がぼけていないことから気泡はまっすぐ上昇しており、本実験の範囲内では、気泡周りの流れが軸対称であり、また、気泡はほぼ球形を保っていることから、本実験範囲内では、気泡は球形であるとみなせる。

3・2 気泡溶解速度の評価 文献(1)によれば、球形気泡の液体中への溶解速度は汚れの影響が少ない場合においては、 Sh 数によって評価され、 Re 数、 Sc 数および Pe 数らの無次元数をパラメータとして整理される。ただし、 Pe 数は、 Sc 数と Re 数の積であることから、 Sh 数は、 Re 数、 Sc 数および Pe 数のうちの二つで整理できる。

気泡溶解過程の Sh 数は、以下のようにあらわされる。

$$Sh = -\frac{R}{(c_s - c_\infty)} \int_0^\pi \left(\frac{\partial c}{\partial r} \right)_s \sin \theta d\theta \quad \cdots \cdots (1)$$

一方、気泡内質量変化と界面を通過する質量流量が等しいことから、以下の式が成り立つ。

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{4}{3} \pi R^3 \rho_g \right) = 2\pi R^2 \rho_l D \int_0^\pi \left(\frac{\partial c}{\partial r} \right)_s \sin \theta d\theta \quad \cdots \cdots (2)$$

式(1)と式(2)より、 Sh 数は以下のように記述できる。

$$Sh = -\frac{2R}{D(c_s - c_\infty)} \frac{(3\dot{R}\rho_g + R\dot{\rho}_g)}{3\rho_l} \quad \cdots \cdots (3)$$

Fig. 2 Photographs showing a rising bubble in Silicon oil

Table 1 Experimental conditions

$\nu(\text{mm}^2/\text{s})$	1.14	2.28	5.09	10.23	19.4	51.56
Height of Liquid	450	450	450	450	450	450
(mm)	(mm)	(mm)	(mm)	(mm)	(mm)	(mm)
Initial concentration of Oxygen	85.9	78.0	59.0	43.3	31.3	0.0
(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)
Atmospheric pressure	100.8	100.9	100.9	101.0	100.9	101.4
(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)	(kPa)

さらに、式(3)はヘンリーの法則と状態方程式を用いることで、以下の式に変形できる。

$$Sh = -\frac{2R}{D(p_g - p_\infty)} \frac{(3\dot{R}p_g + R\dot{p}_g)}{3} \frac{H}{\rho_l RT} \dots\dots\dots (4)$$

ただし、 p_∞ は無限遠濃度に相当する圧力である。

式(4)において、気泡径、気泡径変化速度、温度、液体密度、気泡内圧力およびその時間変化、無限遠濃度に相当する圧力については、気泡溶解実験において測定可能であるが、ヘンリー定数と拡散係数については別の実験で測定する必要がある。

3.2.1 シリコンオイル中の酸素溶解度 酸素のシリコンオイル中のヘンリー定数は、一般的な溶解度測定法である圧力降下法を用いた⁽⁹⁾。この方法は、一定体積の容器内にあらかじめ体積を測定したシリコンオイルを入れ、真空脱気した後に、溶質である酸素を封入しその初期圧を測定する。十分に酸素をシリコンオイル中に溶かした後の圧力を測定し、初期圧との差から溶解度を評価する方法である。

容器の体積を v_T 、液体の体積を v_l 、液体の密度を ρ_l 、温度を T 、ガス初期圧を p_i 、ガス最終圧を p_f とすると、封入ガス量、残ったガス量、液体に溶けた質量は、質量保存から以下のような関係がある。

$$\frac{p_i(v_T - v_l)}{RT} = \frac{p_f(v_T - v_l)}{RT} + \frac{p_f}{H} \rho_l v_l \dots\dots\dots (5)$$

したがって、式(4)における $H/(\rho_l RT) = B$ は以下のようにして求められる。

$$B = \frac{v_l}{v_T - v_l} \frac{p_f}{p_i - p_f} \dots\dots\dots (6)$$

溶解度の測定は恒温槽を用いて気泡溶解実験における温度 23°C を保ちながら行った。また、測定は3回行い、その平均値を溶解度とした。表2に実験的に求めた B を示す。表2中、 δ は誤差を示す。誤差解析は、文献(10)に従った。

3.2.2 シリコンオイル中の酸素の拡散係数

液体中でのガスの拡散係数の測定法には、多くの方法があり、Jhonson-Babb らによりまとめられている⁽¹¹⁾。ここでは、本実験で用いている酸素濃度計のセンサが膜状であることを利用して、片側が閉鎖、もう一方が開放という系で拡散係数を測定する。この系に

おける拡散は、以下の一次元拡散方程式を解くことにより求められる。

$$\frac{\partial c^*}{\partial t^*} = \frac{\partial^2 c^*}{\partial x^{*2}},$$

$$c^* = 0(t^* = 0), c^* = 1(x^* = 1), \frac{\partial c^*}{\partial x^*} = 0(x = 0) \dots\dots\dots (7)$$

ただし、以下のように、 x と t は液膜厚さ L を用いて無次元化し、濃度は初期濃度 c_i と界面濃度 c_s を用いて無次元化した。

$$t = \frac{L^2}{D} t^*, x = L x^*, c^* = \frac{c - c_i}{c_s - c_i}$$

式(7)は解析的に解くことができ、センサ部に相当する $x=0$ における解は以下のようにあらわされる。

$$c^* = 1 - \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2}{\lambda_n} \sin \lambda_n \exp(-\lambda_n^2 t^*)$$

$$\lambda_n = \left(n + \frac{1}{2}\right)\pi \dots\dots\dots (8)$$

式(8)から得られる濃度の時間変化を実験結果にフィッティングすることにより、無次元時間の単位時間に相当する有限時間の長さを求め、そこから拡散係数を評価する。

実験装置の概略を図3に示す。図3に示すように直径7 mmの膜状のセンサの上に直径7 mm、高さ2 mmの円筒上のセルを取付ける。そのセル内に十分に脱気したシリコンオイルを導入し、開放部からシリコンオイル中に拡散してきた空気による酸素濃度時間変化を、底面にあるセンサで測定する。ここで、本実験に用いた酸素濃度測定センサはセンサ内の酸素量に応じて蛍光強度が変化することを利用しており、センサ内外の酸素濃度が平衡となるまでの時間は10%応答で数s程度であり、実験はもっとも短い場合においても数min程度であることから応答性は問題ない。また、平衡状態におけるセンサ内外の酸素濃度モル比は十分小さいことから、センサ表面上の酸素濃度の境界条件として式(7)を用いることができる。図3に示したように液面は表面張力により、セル高さより若干

Fig. 3 Schematic of the experimental measurement for diffusivity

Table 2 Calculated values of B

$v(\text{mm}^2/\text{s})$	1.14	2.28	5.09	10.23	19.4	51.56
B	3.37	3.51	3.64	3.75	3.92	4.02
$\delta B/B$	0.030	0.034	0.022	0.033	0.028	0.028

高くなるため、液膜厚さを精度よく評価できるように、側面から顕微鏡を用いて液膜厚さを測定した。実験は、ブース内で行い、室温を実験値と同じ 23°C に設定した。

次に、この拡散係数の測定法の精度について検証する。ここでは、測定値の存在する水中の酸素の拡散を用いる。実験は、十分に脱気した水をセル内に導入し、液面が安定したことを確認して、高さを測定する。また、濃度の時間変化を変化がなくなるまで測定する。得られた濃度を初期濃度と最終濃度すなわち表面濃度を用いて無次元化し、時間を式(8)に合うように無次元化する。図4に時間を4600sで無次元化した実験結果と解析解を示す。ただし、case 1 と case 2 はそれぞれ実験結果を示す。図4より、実験結果と解析解の濃度時間変化はよく一致している。さらに、液膜厚さの測定結果 3.2 mm を用いて拡散係数を評価すると $2.22 \times 10^{-3}\text{ mm}^2/\text{s}$ となる。このとき、誤差は液膜厚さの測定誤差とフィッティングによる時間に対する誤差を考えると5%程度である。Himmelblau⁽¹²⁾によれば、水中の酸素の拡散係数は、 2.25×10^{-3} (22°C)、 2.22×10^{-3} (22°C) と与えられており、本実験結果は十分誤差範囲内である。したがって、本方法は、拡散係数を評価する方法として用いることが可能である。

表3に本測定方法を用いて測定したシリコンオイル中の酸素の拡散係数と測定誤差および Sc 数を示す。表3中、 δ は誤差を示す。

Table 3 Calculated values of D and Sc

$v(\text{mm}^2/\text{s})$	1.14	2.28	5.09	10.23	19.4	51.56
$D(\text{mm}^2/\text{s})$	10.1	4.55	3.20	2.66	2.20	1.82
	$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$
$\delta D/D$	0.068	0.067	0.058	0.066	0.067	0.055
Sc	113	501	1590	3850	8820	28300

Fig. 4 Time histories of concentration at the sensor

3.2.3 Sh 数の評価 溶解度に相当する B , 拡散係数 D が評価できたことから、 Sh 数の評価は気泡径、気泡径変化速度、気泡内圧力およびその時間変化、無限遠濃度に相当する圧力について評価すれば可能となる。

気泡径は直接測定可能であるが、気泡径変化速度は気泡径の時間変化をフィッティングして、その関数を時間微分して求める必要がある。ここでは、まず、フィッティングの精度はデータ数に依存することから、初期気泡径のほぼ同じ実験を選択し、気泡の変化が一致するように時間移動をさせて、データを一つにまとめた後に、このデータ群をフィッティングする。図5に動粘性係数が $2.28, 10.23, 19.4\text{ mm}^2/\text{s}$ の場合における気泡径の時間変化を丸、四角、三角印で示す。ただし、図を見やすくするためにデータの一部のみを示している。図5より、気泡径変化は滑らかであり、低次の多項式でフィッティング可能であることがわかる。ここでは、二次関数でフィッティングし、その結果をそれぞれ実線で示す。相関係数はどの場合においても 0.999 以上、フィッティングした関数に対する実験値の最大誤差も2%以内であり、精度よくフィッティングできている。気泡径変化速度は、このフィッティングで得られた二次関数を時間微分して求めた。

次に圧力について検討する。無限遠濃度に相当する圧力は設定圧力をそのまま用いることができる。一方、気泡内圧力は静水圧と表面張力を考慮して求める必要がある。特に無限遠濃度に相当する圧力が高い場合には、静水圧を考慮しなければ大きな誤差となる。例えば、液の高さが 500 mm の場合、上部と下部の圧力差は密度が 800 kg/m^3 の場合に 4 kPa となる。無限遠濃度に相当する圧力が 80 kPa 程度の場合には大気圧との差が 20 kPa 程度しかないため、考慮しない場合には20%の誤差を生じることになる。気泡の位

Fig. 5 Time histories of bubble radius

置は上昇速度が1/30間隔で記録されていることから、それを積分することで評価し、密度と合せて静水圧を評価した。また、表面張力による気泡内圧力の上昇分は、シリコンオイルのカタログ値20 mN/mを用いて評価した。ただし、表面張力による圧力上昇分は、気泡径が0.1 mmの場合でも0.4 kPaと小さいことから、影響は少ない。さらに、求めた気泡内圧力を気泡径の場合と同様に二次関数でフィッティングし、その時間微分から気泡内圧力の時間変化を計算した。

以上から、式(4)を用いて Sh 数を評価するが、このときの誤差は、気泡径、溶解度、拡散係数、圧力測定誤差から誤差の伝ば⁽¹⁰⁾を考慮して評価すると最大で約8%となり、本実験結果は Sh 数を評価するために十分精度があることが確かめられた。

4. 上昇気泡の溶解過程に関する数値解析

気泡内部の流れの影響が少なく、かつ気液界面での質量移動が十分速やかであると仮定した場合、上昇気泡の溶解過程を数値的に解析するためには、気泡周りの流れ場と濃度場を求めればよい。著者らは⁽⁸⁾、軸対称球極座標系において Navier-Stokes 方程式を差分法を用いて解くことにより上昇気泡に関する数値解析を行い、抵抗係数の評価において実験結果との良好な一致を示している。本実験結果においても、気泡は球形を保ちながら垂直に上昇していることから流れは軸対称であると仮定できる。したがって、気泡周りの速度場については文献(8)の結果を用いることができる。また、Clift ら⁽¹⁾は、液体中の気泡の溶解過程においてステップ状に周囲液体の濃度を変化させたとき、定常状態の Sh 数の10%以内の値となるまでの時間は $\tau=1.8R/U$ 程度であるとしており、上昇速度が遅く、気泡径が大きい場合に非定常項の影響が長い時間残る。本実験結果において非定常性が問題となるのは、境界層が発達していない気泡が発生したときである。このときにもっとも τ が長くなるのは、粘性が $50 \text{ mm}^2/\text{s}$ の場合で、初期気泡径を 0.5 mm とすると約 0.05 s である。実験における溶解時間の特性時間は図5より、 10 s 以上であることから、気泡周りの境界層はほぼ定常とみなせ、拡散方程式の非定常項は無視できる。

4・1 変数の無次元化と定常拡散方程式 定常拡散方程式において、以下のような変数の無次元化を行った。

$$u = Uu^*, r = Rr^*, c^* = \frac{c - c_\infty}{c_s - c_\infty}$$

無次元化により、軸対称球極座標系における定常拡散

方程式は以下になる。

$$u_r^* \frac{\partial c^*}{\partial r^*} + \frac{u_\theta^*}{r^*} \frac{\partial c^*}{\partial \theta} = \frac{2}{Pe} \left\{ \frac{1}{r^{*2}} \frac{\partial}{\partial r^*} \left(r^* \frac{\partial c^*}{\partial r^*} \right) + \frac{1}{r^{*2}} \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial c^*}{\partial \theta} \right) \right\} \dots\dots\dots (9)$$

また、 Sh 数は以下のように計算される。

$$Sh = - \int_0^\pi \left(\frac{\partial c^*}{\partial r^*} \right)_s \sin \theta d\theta \dots\dots\dots (10)$$

以上の方程式を差分法で解くが、本計算は Sc 数が100以上と大きいことから濃度境界層の厚さは運動量境界層に比較して薄い。したがって、気泡周りに格子点を集中させ、 Pe 数が大きくなるに従い、集中度をあげる必要がある。ここでは、以下のような座標変換を行った。

$$r^* = \frac{1}{(1-y)^a} \dots\dots\dots (11)$$

ただし、

$$a = \sqrt{\frac{10}{Pe}} (Pe \geq 10), a = 1 (Pe < 10)$$

以上の方程式を、三次風上法の一つである K-K 法⁽¹³⁾を用いて差分法し、SOR法で解を求めた。ただし、速度は文献(8)の速度場の結果を補間して求めた値を用いた。メッシュ刻みは、半径方向に100刻み、 θ 方向に100刻みとした。計算には、通商産業省工業技術院情報計算センター(RIPS)の CRAYC 90 を用いた。

4・2 数値計算結果の精度評価 本計算では、 Pe 数の範囲が100以上と大きいことから、数値粘性の影響を精度的に評価する必要がある。

ペクレ数が十分大きい場合における Sh 数は、拡散方程式の境界層近似から気泡界面の速度分布を用いて解析的に以下のように求められる⁽²⁾。

$$Sh = \sqrt{\frac{2}{\pi}} Pe^{1/2} \left[\int_0^\pi u_{\theta s}^* \sin^2 \theta d\theta \right]^{1/2} \dots\dots\dots (12)$$

ここでは、 Pe 数が 10^7 の場合における本数値計算結果と式(12)により求めた結果との比較を、いくつかの Re 数の条件において行い、数値計算結果の精度評価を行う。ただし、式(12)における気泡界面の速度分布は文献(8)の結果を用いた。表4にその結果を示す。ただし、添字 N は数値計算結果、添字(12)は式(12)の結果を示す。表4より、本数値解析結果と式

Table 4 Comparison between numerical and analytical results

Re	0.01	0.1	1	10	100
Sh_N	2062	2062	2115	2447	2978
$Sh_{(12)}$	2060	2060	2114	2445	2976

Fig. 6 Sh as a function of Re

(12)により求めた結果はよく一致していることから、気泡周りの濃度場は Pe 数が大きい場合においても、十分精度よく評価できていることがわかる。

5. 結果と考察

5.1 実験結果と数値計算結果の比較 数値計算結果の十分精度のよいことが確認できたことから、ここでは実験結果との比較を行う。図6に実験における Sc 数と同じ条件で計算を行った数値計算結果と実験結果を示す。ただし、横軸は Re 数、縦軸は Sh 数を示す。また、丸などの印は実験結果を示し、線は数値計算結果を示す。図6より、実験結果と数値計算結果は最大7%以内で一致しており、数値計算結果が球形気泡の溶解過程をよくシミュレートしていることがわかる。このことは、数値解析における内部循環の影響が少なく、気液界面での質量移動が十分速やかであるという仮定が適切であったことを示しており、液体中の気泡の溶解過程は気泡のごく近傍の速度境界層内での溶存気体の拡散過程が律速因子であることを定量的に示したことになる。

5.2 実験結果と推算式との比較 気泡溶解過程における Sh 数を評価するための推算式は、式(12)に速度分布を代入することで、あるいは数値解析結果を相関することで得られる。ここでは、これまで得られたいくつかの推算式と実験結果との比較を行い、推算式の適用範囲について検討する。

低 Re 数領域における溶解速度について、式(12)に Stokes 流れにおける上昇気泡の速度場を与える Hadamard-Rybczynski の解⁽¹⁾を代入することにより、以下のような高 Sc 数における Sh 数を求める式が得られる⁽¹⁾。

$$Sh = 0.65 Pe^{1/2} \quad (13)$$

Oellrich ら⁽³⁾は Hadamard-Rybczynski の解を用いて拡散方程式を直接解き、低 Re 数領域における Sh 数を求めており、その数値解の相関式として以下の式を得ている。

$$Sh = 2 + \frac{0.651 Pe^{1.72}}{1 + Pe^{1.22}} \quad (14)$$

一方、高 Re 数領域における溶解速度については、式(12)に速度分布を代入することで高 Sc 数における Sh 数を求める式を得ている。Boussinesq⁽¹⁴⁾はポテンシャル流れの解、Leclair ら⁽¹⁴⁾は Hamielec ら⁽¹⁵⁾が求めた速度分布、Winnikow ら⁽¹⁶⁾は、Moore⁽¹⁷⁾が求めた速度分布を用いて、それぞれ以下の式を導き出している。

$$Sh = 1.13 Pe^{1/2} \quad (15)$$

$$Sh = (0.65 + 0.06 Re^{1/2}) Pe^{1/2} \quad (16)$$

$$Sh = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(1 - \frac{2.89}{\sqrt{Re}} \right)^{1/2} \quad (17)$$

図7に Re 数に対する実験結果と推算式(13)～(17)で求めた Sh 数を示す。ただし、低 Re 数領域を仮定して得られた式(13)、(14)は Re 数が $0.01 < Re < 10$ の範囲で、高 Re 数領域を仮定して得られた式(15)～(17)は、 Re 数が $0.1 < Re < 100$ の範囲で比較した。図7より、 $0.01 < Re < 10$ の範囲では、式(13)は実験結果より低い値となっている。式(13)は、速度分布として Hadamard-Rybczynski の解を仮定しており、それが適用できない $Re > 0.5$ において実験結果と一致しない⁽⁶⁾のは当然であるが、Hadamard-Rybczynski の解と速度分布が一致する $Re < 0.5$ で、実験結果との差が生まれるのは、実験における Sc 数が、式(13)が適用できるほどの高 Sc 数でないことを示している。Hadamard-Rybczynski の解を用いて拡散方程式を直接解いた解を相関して得られた式(14)は、Hadamard-Rybczynski の解が適用できる $Re < 0.5$ において実験結果とよい一致を示している。以上のことから、低 Re 数領域においては、境界層近似は成り立たず、溶解速度を評価するためには拡散方程式を直接解く必要がある。

一方、 $0.1 < Re < 100$ の範囲では、高 Re 数を仮定して得られた式(15)は、実験結果と大きな違いがある。Hamielec ら⁽¹⁵⁾が求めた速度分布を用いた式(16)は、

Fig. 7 Sh as a function of Re

速度分布が適用できる範囲である $Re < 10$ 以下の範囲で実験結果とよい一致を示している。また、Moore⁽¹⁷⁾の求めた速度分布は $Re > 30$ で、抵抗係数の比較においては実験結果とよい一致を示している⁽⁸⁾が、溶解速度に関しては $Re > 50$ 程度から実験結果との一致を示している。以上のことから、 Re 数が高い場合には、濃度境界層は十分薄く、拡散方程式を境界層近似できることから、式(12)を用いて、溶解速度を十分精度よく評価可能である。

6. おわりに

上昇球形気泡の溶解速度を精度よく評価するために、シリコンオイル中を上昇する気泡に顕微鏡付きのカメラを追従させる実験装置を用いてシリコンオイル中を上昇する酸素気泡の上昇速度と気泡径を広い範囲の Re 数, Sc 数について測定した。さらに酸素のシリコンオイル中の溶解度と拡散係数を測定し、上昇速度と気泡径変化速度と合せて実験結果を Re 数と Sc 数をパラメータにして Sh 数で整理した結果、以下のことがわかった。

(1) Re 数 100 以下の領域での気泡溶解に対する Sh 数を 8% 以内の精度で実験的に評価できた。

(2) 実験結果は、無限流体中を上昇する気泡の溶解過程に関する数値解析解と最大 7% 以内で一致しており、液体中の気泡の溶解過程が、気泡近傍の速度境界層内での溶存気体の拡散過程が律速因子であることを定量的に示した。

(3) 気泡溶解に対する Sh 数を評価するための推算式の精度評価を行った結果、低 Re 数領域においては、境界層近似は成り立たず、溶解速度を評価するためには拡散方程式を直接解く必要があること、 Re 数が高い場合には、濃度境界層は十分薄く、拡散方程式を境界層近似が適用できることから、界面速度分布から溶解速度を十分精度よく評価可能であることがわかった。

文 献

- (1) Clift, R., Grace, J. R. and Weber, M. E., *Bubbles, Drops and Particles*, (1978), 46-53, 135-137, Academic Press.
- (2) Lochiel, A. C. and Calderbank, P. H., Mass Transfer in the Continuous Phase around Axisymmetric Bodies of Revolution, *Chem. Eng. Sci.*, **19**(1964), 471-484.
- (3) Oellrich, L., Schmidt-Traub, H. and Brauer, H., Theoretische Berechnung des Stofftransports in der Umgebung einer Einzelblase, *Chem. Eng. Sci.*, **28**(1973), 711-721.
- (4) Leonard, J. H. and Houghton, G., Mass Transfer and Velocity of Rise Phenomena for Single Bubbles, *Chem. Eng. Sci.*, **18**(1963), 133-142.
- (5) Redfield, J. A. and Houghton, G., Mass Transfer and Drag Coefficients for Single Bubbles at Reynolds Number of 0.02-5000, *Chem. Eng. Sci.*, **20**(1965), 131-139.
- (6) Calderbank, P. H., Johnson, S. L. and Loudon, J., Mechanics and Mass Transfer of Single Bubbles in Free Rise Through Some Newtonian and Non-Newtonian Liquid, *Chem. Eng. Sci.*, **25**(1970), 235-256.
- (7) Brankovic, A., Currie, I. G. and Martin, W. W., Laser-Doppler Measurements of Bubble Dynamics, *Phys. Fluids*, **27**(1984), 348-355.
- (8) 竹村文男・矢部彰, 低レイノルズ数領域における球形気泡の上昇速度, 機論, **63**-613, B(1997), 2909-2914.

- (9) 例えば, Liu, Q., Takemura, F. and Yabe, A., Solubility and Diffusivity of Carbon Monoxide in Liquid Methanol, *J. Chem. Eng. Data*, **41**(1996), 589-592.
 - (10) Benedict, R. P., ほか 5 名, Measurement Uncertainty, *ANSI/ASME PTC*, **19-1**(1985).
 - (11) Johnson, P. A. and Babb, A. L., Liquid Diffusion of Non-Electrolytes, *Chem. Revs.*, **56**(1956), 387-453.
 - (12) Himmelblau, D. M., Diffusion of Dissolved Gases in Liquids, *Chem. Rev.*, **64**(1956), 527-550.
 - (13) Kawamura, T., Numerical Study of High Reynolds Number Flow around a Circular Cylinder, Ph.D. Thesis, The Univ. of Tokyo, (1983).
 - (14) Leclair, B. P. and Hamielec, A. E., Viscous Flow Through Particle Assemblages at Intermediate Reynolds Numbers-A Cell Model for Transport in Bubble Swarms, *Can. J. Chem. Eng.*, **49**(1971), 713-720.
 - (15) Hamielec, A. E., Johnson, A. I. and Houghton, W. T., Viscous Flow around Circulating Spheres of Low Viscosity, *AIChE Jo.*, **13**(1967), 220-225.
 - (16) Winnikow, S., *Chem. Eng. Sci.*, Letter to the Editor, **22**(1967), 477.
 - (17) Moore, D. W., The Boundary Layer on a Spherical Gas Bubble, *J. Fluid Mech.*, **16**(1963), 161-176.
-