気体圧力変動を用いた単一サブミリ気泡発生法*

城田 農^{*1}, 真田 俊之^{*1}, 荒田 康弘^{*2}
渡部 正夫^{*1}, 亀田 正治^{*3}Formation of Single Bubble of Sub-millimeter Size
Using Pulsed Pressure Fluctuation of GasMinori SHIROTA^{*4}, Toshiyuki SANADA, Yasuhiro ARATA,
Masao WATANABE and Masaharu KAMEDA^{*4} Department of Mechanical Engineering Science, Faculty of Engineering, Kyushu University,
744 Motoka, Nishi-ku, Fukuoka-shi, Fukuoka, 819-0395 Japan

The mechanism of a bubble production method using controlled gas pressure fluctuation, originally developed by Kariyasaki and Osaka [*Trans. JSME, Series B*, Vol. 68, No. 674, (2002)], is further investigated using high-speed photography. We found out more appropriate pressure fluctuation than that of Kariyasaki and Osaka in producing single bubble. The radius of bubbles can be varied from about 0.3 to 0.8 mm with extremely small standard deviation of less than 1 μm . Shrinking motion of a capillary bridge connecting a bubble and a nozzle was observed in detail. Force balance on a growing bubble which is based on a spherical bubble formation model is also estimated. As a result, we reveal that when gas pressure is decreased the capillary bridge is sucked down into a nozzle and upward added mass force is applied on a bubble, both of which cause the detachment of a bubble from a nozzle.

Key Words: Bubble, Multiphase Flow, Visualization, Bubble Generator, Capillary Bridge, High-speed Photography

1. 緒 論

船舶, 医療, 食品, 農業, 化学工業など, 多岐にわたる分野で微細気泡の応用が進んでいる。微細気泡の物理・化学的作用を明らかにするためには, 単一あるいは数個の気泡の性質を詳しく調べる必要がある。そのため, 発生気泡径・位置の高精度な制御が要求される精密な実験には, 制御性の高い単一微細気泡発生装置が不可欠である。

静止液体中における不凝縮性ガス気泡の発生には, オリフィス・ノズルなどの微小孔が用いられる。しかし, ガス供給のみによる微小孔からの気泡発生では, サブミリメートルサイズの気泡を得ることは大変困難である。

静止液体下に設置された微小孔から気泡を離脱させる力 (以下, 離脱力と呼ぶ) は, 主に浮力である。浮力

に対し, 気泡の離脱を妨げる力として, 発生部固体表面と気泡との間に働く界面張力, 液体粘性抗力, 付加質量力が気泡に作用する。供給気体流量が小さい場合には界面張力が⁽¹⁾⁽²⁾, 流量が大きい場合には粘性抗力や付加質量力が主要な抗力となる⁽¹⁾⁽³⁾⁽⁴⁾。このような抗力が働く結果, 発生時には気泡は十分な浮力を持つまでに成長しており, その大きさは発生孔径と比べて非常に大きくなる。

浮力と表面張力のつりあいによる離脱気泡半径 R_b は,

$$R_b = \left(\frac{3a\sigma}{2\rho g} \right)^{1/3} \quad (1)$$

となる⁽¹⁾。ただし, a はオリフィス半径, ρ は液体密度, σ は表面張力係数, g は重力加速度である。例えば, 半径 1 mm の気泡を水中に発生させるためには, 半径 0.1 mm 程度のオリフィスが必要である。

さらなる微細化を図り, 半径 0.1 mm の気泡を発生させたい場合, 発生気泡径はオリフィス径の 1/3 乗に比例することに注意すると, 半径 0.1 μm のオリフィスが必要となる。通常の機械加工でこのような大きさのオリフィスを製作するのは困難である。

* 原稿受付 2006 年 7 月 20 日。

^{*1} 正員, 九州大学大学院工学研究院 (〒819-0395 福岡市西区元岡 744)。^{*2} 九州大学工学部 [現: 石川島播磨重工業 (株)]。^{*3} 正員, 東京農工大学大学院共生科学技術研究院 (〒184-8588 小金井市中町 2-24-16)。

E-mail: shirota@mech.kyushu-u.ac.jp

さらに、このような極微細孔を用いた場合、気泡成長を開始させるために最低限必要な圧力が非常に高くなる。気泡成長を開始させるためには、オリフィス上に形成される半球状の気液界面に生じるラプラス圧($=2\sigma/a$)以上に、気体側の圧力を高く設定しなければならない。水中で半径 $0.1\ \mu\text{m}$ のオリフィスを用いた場合、このラプラス圧は 3MPa ほどにもなる。このような高い気体圧力を与えると、気泡は爆発的に成長するため、粘性抗力、付加質量力が気泡に働き、その結果、離脱気泡半径は式(1)に比べてさらに大きくなる。

したがって、サブミリメートルの微細気泡を得るためには、阻害要因に打ち勝つ外力を付加し、気泡離脱を促進しなければならない。付加する外力には、液体の流動によるせん断力を用いることが多い⁽¹⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾。しかし、気泡まわりに実質的な流れを生じさせると、発生後の気泡の位置制御が困難となる。

液体せん断力を用いない手法として、液中超音波を利用した気泡発生法が開発されている。Makuta ら⁽⁷⁾は、液中定在超音波場中にニードルから一定流量で気体を供給し、微細気泡の連続的な発生に成功している。また、Shirota ら⁽⁸⁾は、数周期からなる波束を与えることにより、単一微細気泡の発生に成功している。

一方、Kariyasaki ら⁽⁹⁾は、オーディオスピーカによる気体圧力変動を利用した気泡発生装置を開発し、供給気体側の圧力を変化させることで、気泡サイズ、発生間隔の制御が可能であることを示している。Kariyasaki らの手法は、簡便、かつ実質的な液体流動をとまなわない、という点で優れている。また、この手法では鉛直下向きへの気泡発生も可能である。すなわち、離脱力は浮力ではないことが示されている。しかしながら、離脱メカニズムの詳細は明らかにされていない。また、Kariyasaki らは連続的な気泡発生を主目的として装置開発を行ったため、単一気泡発生に適した圧力変動は明らかにされていない。

本研究では、Kariyasaki らが開発した気体圧力変動利用型気泡発生法の、単一気泡発生メカニズムについて実験的に調べる。気体圧力変動を制御・計測し、併せて気泡発生の様子を高速撮影することにより、発生メカニズムの詳細を調べる。得られた知見をもとに、単一気泡発生に適した圧力変動を見出し、同一ノズルからの広範かつ精密な発生気泡径制御を行う。

2. 実験装置

2.1 気泡発生装置 本気泡発生法では、オーディオスピーカの単発振動による気体圧力変動を利用して、気泡の発生開始、ならびに離脱を能動的に制御する。

Fig. 1 Schematic of measurement system and apparatus for bubble generation.

ファンクションジェネレータ(NF回路設計ブロック, WF1956-A)の任意波形モードにより作成したスピーカ駆動信号をオーディオアンプ(KENWOOD, KAF-3030R)を介してスピーカ(FOSTEX, FF125K)へ入力した。スピーカの筐体は、気体入出口を除いて密閉されており、貯気室として機能する。貯気室内の圧力は、精密圧力コントローラ(Druck, DPI520; 精度: $\pm 3.5\text{Pa}$)により調整した。気泡発生ノズルは、ナイロン製チューブ(外径: 6mm , 内径: 4mm)側壁面に、精密ボール盤を用いて穴あけ加工を施し製作した。

実験では、貯気室内の静圧を、気泡発生に必要な臨界圧力より 0.5 kPa 程度低めに設定した。また、離脱促進用パルスの照射開始時刻 t_d を変化させることにより、発生気泡径の制御を試みた。実験で用いた液体は純水、気体は空気である。なお、気泡発生ノズル半径は 0.1mm である。

2.2 計測システム 気体変動圧力計測、及び気泡発生挙動の撮影を行った。計測システムの概略を図1に示す。気体圧力変動は、精密圧力トランスデューサ(Druck, PDCR4000)、直流アンプ(Teac, SA-59)により計測し、波形記録装置(日置電機, 8835-01; サンプルング速度: $1\ \mu\text{s}$)に保存した。ここで、スピーカ前面に同一長さの2本の気体導管を取り付け、一方を気泡

Fig. 2 Resonant frequency of the acoustic field in the gas supplying tube between audio speaker and nozzle.

Table 1 Signal to drive audio speaker.

	length (ms)	amplitude (V)	pulse form	phase (radian)
W1	0.5	16.9	1/4 sinusoid	0
W2	1.5	22.8	1/2 sinusoid	π
W3	1.5	16.6	1/2 sinusoid	π

発生ノズルへ、他方をトランスデューサへ接続することにより、ノズル位置相当圧力を計測した。

気泡発生過程は高速度カメラ(ノビテック, Phantom V4.2)により、また発生後の気泡像はスチルカメラ(ニコン, D200)により取得した。高速度カメラの撮影速度は、気泡発生全过程を対象とした撮影では7813 fps、離脱の瞬間を対象とした撮影では22000 fpsとした。露光時間は、いずれも20 μ sである。用いた光源は、高速度撮影ではメタルハライドランプ(MORITEX, MME-250)、スチル撮影ではキセノンフラッシュ(菅原研究所, MS-220; 発光時間10 μ s)である。いずれの撮影においても、カメラベローズを用いた拡大接写撮影を行った。撮影におけるA/D変換時のピクセル解像度は、高速度カメラでは8.6 μ m/pixel、スチルカメラでは2.0 μ m/pixel程度であった。

得られた画像をもとに、気泡等価半径、ならびに重心高さを算出した。画像処理には、MATLABを用いた。

3. 実験結果

3.1 気体導管音響特性 本気泡発生法では、スピーカ前面から気泡発生ノズルまでの気体導管が音響管となり、離散的なスピーカ駆動周波数の音波が卓越する。ここで、一端開口端の共振周波数 f_n は、

$$f_n = \frac{(2n-1)c}{4(L+L_e)} \quad (n=1, 2, \dots) \quad (2)$$

である。図2は、本実験条件(空気音速 c : 344.5 m/s, 導管長さ L : 1.67 m, 開口端補正長さ L_e : 0.12 m)を用いて式(2)より求まる共振周波数と実測値を比較した

結果である。この図に示すように両者は良く一致し、気体導管が音響管となっていることがわかる。

本手法では、パルス圧力変動を組み合わせ、気泡発生を制御する。ここで、スピーカ駆動周波数と音響管の共振周波数が一致すると、余剰な圧力変動を生じる。そのため、単一気泡発生においては、式(2)に示される共振周波数を避けて、パルス周期を選定する必要がある。本実験で用いた、気泡成長開始用パルスならびに離脱促進用パルスの周波数(正弦波1波換算値)は500, 333 Hzである。用いたパルス変動圧力の詳細は、表1に示す通りである。

3.2 気泡発生過程 まず始めに、気泡発生開始用パルス W1 のみを与えた場合の実験結果を図3(A)に示す。図3(A)-(1)は、スピーカ駆動信号(上段)ならびに発生圧力変動(下段)である。スピーカからノズルまでの音波の伝播時間(約5ms)経過後に、圧力上昇が開始した。(2)は(1)に示す圧力変動を与えた場合の気泡発生の様子を示す高速度撮影像である。気泡成長開始時刻(a)は約5.4msであるが、この時の気体圧力変動の大きさは1kPa程度であった。この図から、発生初期段階(〜(f))を除いて、気泡はほぼ球形を保ちながら成長している様子がわかる。(j)前後から、気泡下部とオリフィスとの間に形成されていた毛管架橋が、気泡重心の上昇に伴い伸張され始め、(l)で毛管架橋の切断、すなわち気泡離脱が観測された。発生開始パルスのみで得られた気泡半径は0.8 mm程度であった。

次に、離脱促進用パルス W2 を付加した場合の結果を図3(B)に示す。ここでは、発生開始用パルスと離脱促進用パルスとの時間間隔 T_d は2 msである。高速度撮影像を調べると、(A)の場合とは異なり、(l)に示されるような減圧(振幅2.5kPa程度)に伴い強制的に気泡が離脱したことがわかる。しかし、圧力波形図(B)-(1)に見られるように、時刻18 ms程度から、圧力が再上昇した。これは、離脱促進用パルスによって生じた減圧波形が、ノズル先端部での固定端反射、及びスピーカ部での自由端反射をし、再度ノズル部に伝播してきたことによる。この圧力の再上昇により、2個目の気泡が発生した((p)-(x))。

圧力の再上昇を抑制するために、ノズル先端部で固定端反射した音波がスピーカ部へ到達した時刻に、再度減圧波を与えた。結果を図3(C)に示す。図3(C)-(1)から、(B)の場合に生じた時刻18 ms付近の圧力の再上昇が抑制されていることがわかる。気泡発生から約30 ms後に取得したスチルカメラ像(C)-(3)に示されている様に、圧力の再上昇を抑制することによって、二次気泡の発生を阻止できた。 $T_d=2$ msの本実験条件で

Fig. 3 Three different typical types of bubble formation representing one with a positive pulse, W1, for the initiation of bubble formation, (A); with the initiation pulse and a negative pulse, W2, to detach a bubble from the nozzle, (B); and with an additional negative pulse, W3, to cancel out the reflected acoustic wave of the first negative pulse, (C). Subcategory (1), (2) and (3) show, respectively, signal to drive the audio speaker and the corresponding pressure fluctuation at the nozzle, a series of selected frames of bubble formation taken with high-speed photography at 7813 fps, and a snap shot of detached bubbles about 30 milliseconds after its detachment.

Fig. 4 Mean values of radius of detached bubble over ten runs against T_d , (a), and the snap shots of detached bubbles for each T_d .

は、半径 0.6 mm 程度の気泡発生に成功した。

3.3 離脱気泡径制御 気泡離脱後の余剰な圧力上昇を抑制した変動圧力波を用いた場合の、離脱気泡径について考察する。 T_d と離脱気泡半径との関係を調べた結果を図 4 に示す。離脱気泡半径は、気泡形状を鉛直方向に関して軸対称と仮定して算出した体積等価半径である。図 4 より、離脱気泡半径は、 T_d の変化により制御可能であることがわかる。

図 4 の破線は、図 3(A)-(2) に示した、発生開始用パルス W1 のみを与えた場合の気泡半径の時間発展を表している。ただし、破線に示される気泡成長の開始時刻を、 $T_d = 0$ と合わせるために、W1 のパルス幅分 (0.5 ms) ずらしてプロットした。図 4 から、両者が概ね一致していることがわかる。したがって、本手法における離脱気泡半径は、気泡半径の時間発展をもとに予測可能である。

図 4 の各プロットは、気泡サンプル数 10 個より求めた平均値である。各平均値ならびに標準偏差を表 2 にまとめた。表 2 より、本実験でえられた離脱気泡半径の標準偏差は、 T_d によらず、約 1 μm と非常に小さかった。これは、撮影解像度以下の大きさであり、本手法の再現性は良好である。最終的に得られた気泡半径は、0.28～0.78 mm であった。

Table 2 Mean value and standard deviation of radius of bubble in figure 4.

T_d (ms)	mean value(mm)	standard deviation(mm)
0.0	0.279 8	0.000 9
0.1	0.310 5	0.000 9
0.2	0.334 5	0.000 5
0.5	0.375 0	0.000 5
1.0	0.473 8	0.000 9
1.5	0.545 9	0.000 3
2.0	0.609 2	0.000 5
2.5	0.666 3	0.000 4
3.0	0.706 3	0.000 3
3.5	0.740 7	0.000 7
4.0	0.776 7	0.000 9

Fig. 5 A series of two different consecutive frames taken at 22 000 fps, showing shrinking motion of capillary bridge at the bottom of the bubble detaching from a nozzle only with buoyancy, (a), and with a pulsed decrease in gas pressure, (b).

4. 気泡離脱メカニズム

本手法における気泡離脱メカニズムについて考察した。特に、離脱促進用パルス W2 によって気体圧力を減圧させることの効果に着目した。以下、減圧をしなかった場合、及び減圧した場合 ($T_d=2$ ms) の気泡発生過程について、比較・検討した結果を示す。

4.1 気泡離脱時の毛管架橋切断挙動の違い 気泡離脱時における、気泡下部とノズルとの間に形成される毛管架橋伸張・切断挙動の高速度撮影像を図 5 に示す。図 5(a) は減圧をしなかった場合の、(b) は減圧した場合の結果を表している。この図から、浮力のみで離脱する場合には、ノズル上面からノズル径程度上方において毛管架橋が切断しているのに対し、減圧した場合は、切断位置がノズル面へと下降していることがわかる。不透明ノズルを用いたため切断位置の直接観測は行えなかったが、減圧した場合には固気液三相境界線がノズル内部へと浸入したと考える。

Fig. 6 Time evolution of radius and the height of bubble center, R and s . The lines represent fitted curves obtained using smoothed spline function.

4-2 球形モデルに基づいた発生気泡に働く力の見積もり 図6に、浮力のみで離脱する場合(a)、及び減圧により離脱する場合(b)の気泡等価半径 R ならびにノズル面から測った気泡重心高さ s の時間履歴を示す。図6(b)に示されるように、減圧した場合には、気泡半径は低下しているのに対し、気泡重心高さは上昇し続けている。この気泡重心の上昇と、前節に示した固気液三相境界線が下降することにより、毛管架橋が伸張・切断され、気泡は離脱する。

ここで、気泡重心に上昇速度をもたらし上向きの力について、球形気泡発生モデルに基づいて考察する。考慮する力は、浮力 F_b 、粘性抗力 F_v 、付加質量力 F_a であり、それぞれ

$$F_b = \frac{4}{3}\pi R^3 \rho g, \quad (3)$$

$$F_v = -12\pi\mu R \frac{ds}{dt}, \quad (4)$$

$$F_a = -\beta \frac{4}{3}\pi\rho \frac{d}{dt} \left(R^3 \frac{ds}{dt} \right) \quad (5)$$

と表される。ただし、 μ は液体粘性係数、 $\beta(=11/16)$ は壁面近傍を運動する球形粒子によって引き起こされる流れの付加質量係数である⁽¹⁰⁾。

得られた実験データを、MATLAB を用いて解析した。図6に示す気泡発生過程のうち、気泡離脱時刻直前の約 1.3 ms の R, s を平滑化スプラインで近似し、またスプライン関数の微分公式より R, s の微分値を算

Fig. 7 Time evolution of buoyancy, F_b , viscous drag, F_v , and added mass force, F_a on a bubble.

出した⁽¹¹⁾。図6に示される曲線が R, s の近似曲線である。

得られた R, s の瞬時値、及び微分値から、 F_b, F_v, F_a を求めると、図7のようになる。まず、図7(a)の F_a に着目すると、負の値を取っていることがわかる。これは、気泡がほぼ一定速度で上昇しながら膨張 ($dR/dt > 0$) していることに起因する。この例が示すように、単純に気泡内へ気体供給を行った場合、付加質量力は気泡離脱を妨げる力として作用する。図7(a)の浮力 F_b は、一定の速度で増加している。すなわち、気泡内への供給気体流量が一定であることを示している。(a)では、離脱力は浮力であることが明らかである。

一方で、気体圧力の減圧を行った(b)では、減圧に伴い付加質量力が上向きの離脱力として作用していることが明らかに示されている。この上向きの付加質量力は、気泡の収縮運動 ($dR/dt < 0$) によって主に引き起こされている。離脱時において、付加質量力は浮力の3倍程度大きい。したがって、本手法における気泡離脱力は付加質量力である。なお、粘性抗力 F_v は、本手法においては無視できることが、図7よりわかる。

5. 結 論

気体パルス圧力変動を用いて、液体下に設置されたノズルからの気泡成長の開始、ならびに離脱の促進を行った。気体導管の音響特性を調べ、気泡発生に適し

たパルス圧力変動を選定した。また、精密な圧力計測に加えて、気泡発生過程を高速度撮影により詳細にとらえ、離脱特性を調べた。さらに、球形気泡発生モデルに基づき、ノズルから発生する気泡に働く力を求めた。その結果、以下の結論を得た。

- (1) 浮力のみによって発生する気泡と比べて十分小さい気泡を、一回の動作で一個だけ発生可能である。
- (2) 減圧パルス照射開始時刻 T_d を変化させることで、発生気泡径を制御することができる。本実験条件(液体：純水、ノズル半径：0.1 mm)では半径 0.28 ~ 0.78 mm の気泡が得られた。
- (3) 気体圧力を減圧することにより、気泡下部とノズルとの間に形成される毛管架橋の切断が、ノズル内部で生じる。
- (4) 支配的な離脱力は、気泡収縮にともなう、付加質量力である。

謝 辞

本研究を行うにあたり、日本学術振興会科学研究費補助金 [基盤研究 (B)(2), 課題番号 17360082], 文部科学省平成 15 年度 21 世紀 COE プログラム [水素利用機械システムの統合技術] の助成を受けた。記して謝意を表します。

文 献

- (1) Oğuz, H. N. and Prosperetti, A., Dynamics of bubble growth and detachment from a needle, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol.257(1993), pp.111–145.
- (2) Blanchard, D. C. and Syzdek, L. D., Production of air bubbles of a specified size, *Chemical Engineering Science*, Vol.32(1977), pp.1109–1112.
- (3) Davidson, J. F. and Schüller, B. O. G., Bubble formation at an orifice in a viscous liquid, *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, Vol.38(1960), pp.144–154.
- (4) Davidson, J. F. and Schüller, B. O. G., Bubble formation at an orifice in an inviscid liquid, *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, Vol.38(1960), pp.335–342.
- (5) Ohl, C. D., Generator for single bubbles of controllable size, *Review of Scientific Instruments*, Vol.72, No.1(2001), pp.252–254.
- (6) Chen, W. B. and Tan, R. B. H., Theoretical analysis of bubble formation in a co-flowing liquid, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, Vol.35, No.10(2002), pp.952–962.
- (7) Makuta, T., et al., Generation of micro gas bubbles of uniform diameter in an ultrasonic field, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol.548(2006), pp.113–131.
- (8) Shirota, M., et al., Formation of single bubbles from a submerged orifice using pulsed ultrasound wave, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.72, No.717(2006), pp.1220–1227.(in Japanese)
- (9) Kariyasaki, A., and Ousaka, A., Control of bubble formation, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.68, No.674(2002), pp.2712–2718.(in Japanese)
- (10) Milne-Thomson, L. M., *Theoretical Hydrodynamics*,(1996), p.528, Dover.
- (11) *Spline Toolbox for Use with MATLAB*,(2005), The MathWorks.