混合蒸気の直接接触凝縮を用いたマイクロバブル生成*

Microbubble Generation Using Direct-contact Condensation of Mixed Vapor

寺坂 宏一** 斎藤 淳平*** 戸田 佑*** 小林 大祐**
TERASAKA Koichi SAITO Jumpei TODA Yu KOBAYASHI Daisuke

Abstract Popular microbubble generators need great mechanical power to produce microbubbles. It is a disadvantage when the microbubble distributors are applied in industries. A novel microbubble generation system using direct-contact condensation of the mixed vapor bubbles was invented. The system has simpler construction, easier maintenance and less mechanical energy consumption than the other ones. To understand the microbubble generation, the phenomena of the direct-contact condensation of mixed vapor bubbles were observed using a high speed video camera attached to a microscopic lens. The microbubble size depends on the superficial vapor velocity, vapor composition and inner nozzle diameter. The microbubble generation mechanism consists of the mixed vapor bubble dispersion from jet plume, the breakage of the bubbles and the bubble shrinkage by condensation of steam component. By the correlation of the experimental results, the empirical equation which can estimate the median mean diameter of microbubbles distributed in water within an accuracy of $\pm 5\%$ was proposed in this study.

Keywords: Microbubble, Bubble Diameter, Direct-contact Condensation, Steam

1. 緒 言

最近、マイクロバブルを利用した各種工業プロセスの実用化が進められている。

例えばガスとしてオゾンを含むオゾンマイクロバブルを用いた廃水浄化プロセスの検討が行われている。Yamashita [1]はベンチュリー式およびエゼクター式マイクロバブル発生器を用いて絹精練工場排水の脱色を試み、Kumagai *et al.* [2]は染色工場排水中の難分解性化合物分解率を向上させた。Sugiyama *et al.* [3]は尿処理の脱色に利用した。また、Takahashi [4]は工場排水中のフェノールをオゾンマイクロバブルから発生するラジカルで処理できると報告している。Naito *et al.* [5]はオゾンマイクロバブルによる有機物分解に及ぼす装置条件を検討した。

空気マイクロバブルを用いた例として、Sakata *et al.* [6]は半導体製造工場からの廃液の生物化学的処理成績を向上させた。

洗浄プロセスへの応用として、Miyamoto *et al.* [7]は金属加工・切削後の部品の洗浄に応用し、Himuro [8]は人工汚染布および海苔網の洗浄にマイクロバブルを利用した。Serizawa [9]は油で汚染した土壌の浄化を行い、Yasui *et al.* [10]はマイクロバブルに光触媒を組み合わせる有機物分解を試みている。他にも医療分野 [11-14]や、燃料燃焼[15]、船舶の摩擦低減[16]などの分野にも広く応用が広がりつつある。

以上で挙げた例をはじめ、マイクロバブルはさまざまな分野での適用が進められているが、それらの発生法や発生装置は多種多様である。

Terasaka [17]は主なマイクロバブル発生器を、旋回液流式、スタティックミキサー式、エゼクター式、ベンチュリー式、加圧溶解式、極微細孔式などに分類した。それぞれの発生法についての特徴や長所短所を整理し、ガス吸収を目的としたときの性能評価を行い、従来型ミリバブル分散器と

* 2008.11.28 受付

** 慶應義塾大学理工学部応用化学科 〒223-8522 神奈川県横浜市港北区日吉 3-14-1

TEL:(045)566-1575 FAX:(045)566-1575 E-mail: terasaka@apple.kcio.ac.jp

*** 慶應義塾大学大学院理工学研究科開放環境科学専攻

の比較を行った。さらに空気中の酸素を水中に溶解させるプロセスを想定した検討を行い、マイクロバブルを利用すればミリバブルよりも高い酸素溶解速度を実現できることを示した。しかし、現状ほとんどのマイクロバブル発生法では発生器への高速送液が必要で、大きな付加動力が必要であることを示した。これはスケールアップにおいてとくに重要な問題となる。

Terasaka [18]は送液ポンプを必要としない混合蒸気の直接接触凝縮を利用したマイクロバブル発生法を考案した。スチームを冷却水中にノズルから十分な速度で吹き込むと、蒸気泡として分散されたのちに凝縮しつつ収縮し、液相に同化する。このとき、スチーム中に非凝縮ガス成分が存在すると、冷却水中での凝縮・収縮は完全には進行できず、非凝縮成分ガスからなるマイクロバブルが残る。この方法ではノズルから混合蒸気ミリバブルを分散させるだけで自己収縮によりマイクロバブル化するため、特殊なノズル形状は不要となり、閉塞などのトラブルが防止できる。また、多くの化学工場では高压スチームをユーティリティとして備えており、投棄している過剰スチームを利用できれば、マイクロバブル化する動力コストの削減が可能である。また構造上、設備投資は少なく、スケールアップが容易でメンテナンス性の向上が期待できる。

一方、スチームを利用した蒸気泡生成に関して多くの研究がなされている。Kamei and Hirata [19]は水中における単一蒸気泡凝縮の際に生じる高速伴流を確認した。Koizumi *et al.* [20]は原子炉での利用が期待される蒸気インジェクタ開発を目的とした蒸気泡の伝熱に関して報告している。Mori *et al.* [21]は非凝縮成分を含むスチームの伝熱に関する知見を示した。Gulawani *et al.* [22]らは液中へのスチームジェットの吹き込みに関する理論的な知見を整理した。

そこで本研究では、凝縮成分として水（スチーム）、非凝縮成分として窒素ガスをもつ混合蒸気泡を冷却水との直接接触凝縮によりマイクロバブルとして分散させ、そのサイズに及ぼす操作因子の影響を実験的に明らかにした。得られた実測結果を化学工学的に整理し、分散マイクロバブルサイズを予測できる実験相関式を導いた。

2. 実験装置および方法

Fig. 1 に混合蒸気直接接触凝縮法によるマイクロバブル発生実験の装置図を示した。

圧力 0.5MPa、温度 150℃のスチームはボイラー(三浦工業：ME-10 型)から安定供給されるように調整された。予めノズルごとに、スチームの質

量流量 Q_{STM} とボール弁(4a)の開度との関係を検定し、 $0.136 \times 10^{-3} \sim 0.243 \times 10^{-3}$ kg/s の範囲で Q_{STM} を調整した。窒素ガスの質量流量 Q_{N_2} はマスフローコントローラー（コブロック：MODEL 3660）を用いて $0.194 \times 10^{-6} \sim 0.776 \times 10^{-6}$ kg/s の範囲に調整されたのち、ガス混合器でスチームと十分に混合された。本実験では、スチーム質量流量 Q_{STM} に対して Q_{N_2} は 0.2%以下であるため、全混合蒸気質量流量 Q_G は Q_{STM} に等しいとみなした。混合蒸気はボールバルブを経て、垂直下向きノズルからガラス製水槽中に仕込まれた液中に分散された。ここで液相としては、予め溶存ガスを煮沸により追い出し、密閉下で徐冷した水道水を用いた。

Fig. 1 Experimental apparatus.

本実験では、ノズルとして3種類の内径と2種類の長さをもつステンレス製パイプを用いた。Table 1 に各ノズルの内径 D_i 、外径 D_o および長さ L を示した。ノズル A、B および C はそれぞれ直径が異なり、1 と 2 ではそれぞれ長さが異なる。ノズル長さはノズルの圧力損失を調整することで通過ガス流量を大きく変化させるために変えられた。

Table 1 Dimensions of nozzles used.

Nozzle	I.D. D_i [mm]	O.D. D_o [mm]	Length L [mm]
A1	0.50	1.58	20.3
A2			51.3
B1	0.79	1.59	20.5
B2			50.0
C2	1.76	3.18	50.4

Photo 1 に本実験で使用した代表的な3種のステンレス製円管ノズルの写真を示した。

Photo 1 Typical nozzles used.

ノズルおよび配管は予熱および圧力を安定化させるために約 5 分間混合蒸気をパージした。その後ノズルを室温の液中に先端から約 10～20 mm 程度挿入し、約 30～40 秒間混合蒸気を噴出させた。この間の平均液温の上昇は最大 3℃であった。液中に挿入されたノズルの先端からは、混合蒸気からなる気泡が生成し、凝縮に伴って急速にマイクロバブル化した。その状況を観測するために、顕微鏡レンズ（キーエンス：ズームレンズ VH-Z25）で視野を拡大した高速度ビデオカメラ（Red Lake: Motion Meter）でノズル先端付近を撮影した。

また水槽中に、ファイバーランプ（岩崎電気：MLDS250 250W）と鏡を内蔵した矩形ガラス容器を沈め、水槽内壁と沈没容器外壁との間の狭い空隙からなる平面ができるように固定した。水槽中を浮遊する安定なマイクロバブルの一部はこの空隙内を滞留した。その状況を、ガラス水槽の外壁面から顕微鏡レンズ付高速度ビデオカメラで撮影した。代表的な映像を Photo 2 に示した。

Photo 2 Produced microbubbles in this system.

マイクロバブルはほぼ真球とみなすことができるので、撮影された 300 個のマイクロバブル直

径 d を画像解析ソフト（住友金属テクノロジー：粒子解析 III Ver.3.00）を用いて解析し、気泡径分布およびメディアン平均径 d_{exp} を求めた。

操作パラメーターとして、ノズル内を通過する混合蒸気流量 Q_G と窒素ガス流量 Q_{N_2} 、また混合蒸気中の窒素分率 y_{N_2} 、ノズル内径 D_i を変化させ、生成したマイクロバブルの平均径 d_{exp} を測定した。

3. 結果および検討

3.1 マイクロバブル径分布

Fig. 2 にノズル B2 を用いて窒素ガス質量流量 Q_{N_2} を 0.388×10^{-6} kg/s で一定とし、混合蒸気流量 Q_G を 0.136×10^{-3} から 0.243×10^{-3} kg/s まで変化した条件下で、液中に分散されたマイクロバブル径 d の分布を示した。それぞれの窒素組成 y_{N_2} は 0.1% から 0.2% まで変化した場合に相当する。100 μm 以上の直径をもつ気泡の生成はごくわずかで、20～40 μm にピークがある分布をもつマイクロバブルが生成していることが確認された。この結果より、 y_{N_2} の減少あるいは Q_G の増加とともに気泡径が減少することがわかった。

Fig. 2 Microbubble size distribution.

3.2 窒素流量および窒素ガス分率の影響

Fig. 3 に平均気泡径 d_{exp} に及ぼす窒素ガス流量 Q_{N_2} の影響を示した。混合蒸気流量 Q_G を一定に保ち、 Q_{N_2} を増加させると d_{exp} は増加した。混合蒸気流量が一定なので、ノズルから発生した直後の蒸気泡のサイズはほぼ同じとみなせる。しかし、その後水分の凝縮に伴いマイクロバブル化する際に、窒素は凝縮せずに気体として残存する。従って最初の蒸気泡中に含まれる窒素の分率 y_{N_2} が大きいほど残存ガス量が大きくなり、マイクロバ

ブルのサイズが大きくなったと考えられる。

Fig. 3 Effect of N_2 mass flow rate on dispersed microbubble size.

Fig. 4 に蒸気泡に送られた混合蒸気中に含まれる窒素ガス成分の体積分率 y_{N_2} が平均気泡径 d_{exp} に及ぼす影響を示した。窒素濃度の上昇とともに平均気泡径はほぼ比例して増加した。

Fig. 4 Effect of N_2 gas fraction in vapor feed on dispersed microbubble size.

3.3 混合蒸気流量の影響

Fig. 5 にノズルを通して気泡に送られた全混合蒸気の質量流量 Q_G を変化させた場合に観測された平均気泡径 d_{exp} を示した。混合蒸気中に含まれる窒素ガス量 Q_{N_2} を一定に保持していても、 Q_G の増加とともに d_{exp} は減少した。また、同一の Q_G においては Q_{N_2} が大きいほど d_{exp} は大きくなった。

本実験範囲では、全蒸気のうち 99.8 % 以上をスチームが占めているため、 Q_G の変化のほぼ全てはスチームの増加に依存している。 Q_G の増加は

ノズルから噴出するガス速度を増加させ、静止した連続水相との接触の際に生じる大きなせん断力により、生成した蒸気泡はより細かく粉碎される。そのため分散されたマイクロバブルの平均径 d_{exp} は低下したと考えられる。

Fig. 5 Effect of mixed vapor flow rate on dispersed microbubble size.

3.4 ノズル内径の影響

Fig. 6 に混合蒸気流量 Q_G および窒素ガス分率 y_{N_2} を一定とした条件における平均気泡径 d_{exp} に及ぼすノズル内径 D_i の影響を示した。 D_i の増加とともに d_{exp} は大きくなった。

一定の混合蒸気流量下ではノズル内径 D_i の増加とともに、ノズル内を通過する混合蒸気空筒速度 u_G ($=$ 混合蒸気体積流量/ノズル断面積) が減少するため、蒸気泡生成時に液相とのせん断による粉碎が減少し、生成気泡サイズが大きくなったと推察した。

Fig. 6 Effect of nozzle diameter on microbubble size under constant vapor mass flow rate

そこで、混合蒸気空筒速度 u_G を一定とした実験で得られた平均気泡径 d_{exp} とノズル内径 D_i と

の関係を図 7 に再プロットした。この図より、混合蒸気空間速度 u_G を一定とした条件下では、 D_i の増加とともに d_{exp} は減少する傾向が見られた。これはノズル先端側壁が一部冷却水と接触しているためノズル内部で蒸気分縮が生じ、ノズル下端での u_G が減少したためである。分縮量は単位蒸気量あたりの伝熱面積に依存するので、 D_i の減少に伴い u_G が低下し、生成気泡サイズが増大したと考えられる。

Fig. 7 Effect of nozzle diameter on microbubble size under constant superficial vapor mass flow rate.

4. 混合蒸気の直接接凝縮によるマイクロバブル生成モデル

Photo 3 にノズル下端から約 2 から 3 mm 下方の位置で混合蒸気ブルームがマイクロバブル化する状況を顕微鏡レンズ付き高速ビデオカメラで撮影した写真を示した。各写真間の時間差は 1 ms である。ブルーム先端で蒸気は小さな気泡に分裂・粉碎され、さらに急速に収縮・凝縮が進んでいることがわかった。

そこで、本研究では Fig. 8 に示したメカニズムで混合蒸気泡がマイクロバブルに変化すると仮定したモデルを提案した。

非凝縮性ガスを含んだ混合蒸気をノズルから冷却水中に噴射すると、ジェット状ブルームが形成される。ブルームと水との間のせん断によって蒸気泡が離脱・分散される。蒸気泡は周囲の液流や凝縮による収縮によって界面が不安定化し破碎される。比表面積の増大に伴い、蒸気泡は急速に冷却され、凝縮成分(スチーム)は液化して水相と同化し、非凝縮成分(窒素)はマイクロバブルとして分散される。

以上のモデルに基づき、分散される液滴径を次のように推定した。

まずジェットブルーム先端から発生する混合蒸気泡の生成は、Tadaki and Maeda [23]が水中に空気を

定温・高流速下でジェット状に吹き込んだ際に分散される気泡径の推定に用いられる式(1)が適用できるとした。

平均気泡径を d_{VB} とするとき、

$$d_{VB} = \sqrt[3]{1730 N_w^{-1.3} \sigma D_i / g \rho} \quad (1)$$

Photo 3 Breakage and condensation of vapor bubbles spouted from a nozzle. Nozzle: B2, Q_G : 0.136×10^{-3} kg/s, Q_{N_2} : 0.388×10^{-6} kg/s, y_{N_2} : 0.0020.

Fig. 8 Concept of microbubble generation utilizing direct-contact condensation of vapor containing incondensable component.

ここで N_w は無次元化ガス流量 ($= D_i^{1.5} u_{Gp} g^{0.5} / \sigma$) で、 σ は界面張力 [N/m]、 ρ は液密度 [kg/m³] および g は重

力加速度[m/s²]を表す。

続いて、気泡内の水蒸気成分の凝縮液化、冷却による気泡内窒素ガスの収縮を理想気体法則より求めた。

このとき同時におこる蒸気泡破碎分裂の際に、気泡1個当たりの平均分裂個数を n として、Fig. 9 に示したように実測値との相関により求めた。

Fig. 9 Correlation of bubble isolation number for volumetric fraction of N₂ in bubble.

これより、平均分裂個数 n は分裂前の気泡径 d_{VB} が大きいほど大きくなった。これは気泡が大きいほど気泡界面の曲率半径が大きいために安定な界面を維持することが困難になるためである。さらに、窒素分率 y_{N2} の増大とともに分裂個数は大きくなった。

これらの関係から次の相関式が得られた。

$$n = 4.20 \times 10^7 y_{N2}^{0.56} d_{VB}^{1.68} \quad (2)$$

Fig. 10 Comparison between experimental and estimated microbubble diameters.

よって、分裂、凝縮および収縮による体積変化を考慮した分散気泡径 d_{cal} は次式で推算される。

$$d_{cal} = \left(\frac{T_L}{T_S} \frac{P}{p_{N2}} \frac{y_{N2}}{n} \right)^{1/3} d_{VB} \quad (3)$$

ここで、 n は平均分裂個数[-]、 T_L は冷却水温度[K]、 T_S は蒸気温度[K]、 P は全圧[Pa]、 p_{N2} は窒素分圧[Pa]である。

Fig. 10 に混合蒸気直接接凝縮によるマイクロバブル生成モデル(式(1)~(3))から求めたマイクロバブル径 d_{cal} と実測した d_{exp} との関係を示した。これより、本モデルは本実験操作範囲では±5%の程度のばらつきの範囲内で実測値をよく表すことができた。

5. 結 言

凝縮成分と非凝縮成分からなる混合蒸気の直接接凝縮を利用した新しいマイクロバブル発生法によりマイクロバブルを生成・分散させることができた。またマイクロバブルのサイズは、ノズルを通過するガスの空筒速度の増加、非凝縮ガス成分の減少、ノズル径の増大に伴って小さくなった。

また、本研究における混合蒸気の直接接凝縮によるマイクロバブル生成の観察より生成メカニズムを表すモデルを提案し、実験相関式を導いた。本相関式により、本研究での操作パラメーターの範囲内では液中に分散されるマイクロバブルサイズを比較的よく推算できた。

Nomenclature

D_i	: Inner nozzle diameter	[mm]
D_o	: Outer nozzle diameter	[mm]
d	: Bubble diameter	[μm]
d_{cal}	: Estimated bubble diameter	[m]
d_{exp}	: Median mean bubble diameter	[m]
d_{VB}	: Mixed vapor bubble diameter	[m]
g	: Gravitational acceleration	[m/s ²]
L	: Nozzle length	[mm]
N_W	: Dimensionless gas flow rate	[-]
n	: Isolated bubble number	[-]
p_{N2}	: Partial pressure of N ₂	[Pa]
Q_G	: Mass flow rate of mixed vapor	[kg/s]
Q_{N2}	: Mass flow rate of N ₂ gas	[kg/s]
Q_{STM}	: Mass flow rate of steam	[kg/s]
T_L	: Liquid temperature	[K]
T_S	: Steam temperature	[K]
u_G	: Superficial velocity of mixed vapor	[m/s]
y_{N2}	: Volumetric fraction of N ₂	[-]
Greek letters		
P	: System pressure	[Pa]
ρ	: Liquid density	[kg/m ³]
σ	: Interface tension	[N/m]

参考文献

- [1] Yamashita, S., Development of Water Treatment System with Finer Ozone Bubbles (2nd Report) (in Japanese), Report of Industrial Research Center of Northeastern Part of Shiga Prefecture in 2005 (in Japanese), 23-25 (2005).
- [2] Kumagai, T., Tajima, T., Aso, N., Kurihara, H., Nagasawa, S. and Takahashi, N., Biodegradability Improvement of Biorefractory Compounds Using Highly Concentrated Ozone, Reports of Saitama Industrial Technology Center (in Japanese), Vol. 2, 35-39 (2003).
- [3] Sugiyama, T., Komura, M., Hirai, S., Takahashi, T., Saechout, V., Sugaya, S. and Aoki, S., Field-Testing of Sewage Decolorization Using Micro-Bubble Ozone, Proc. of 44th Autumn Meeting of the JSME Northeastern Branch (in Japanese), 93-94 (2008).
- [4] Takahashi, M., Development of Highly Efficient Decomposition Technology of Toxic Chemical Substance Using Microbubble Collapse (in Japanese), Reports of NEDO Development of Fundamental Technologies for Reducing the Risk of Hazardous Chemicals (in Japanese), 1-51 (2006).
- [5] Naito, T., Yasuda, K., Horizoe, H. and Okanishi, S., Effect of Equipment Condition on Organic Compound Decomposition by Using Micro-Bubble Ozone, Proc. of Annual Meeting 2008 of the Japanese Society for Multiphase Flow, 74-75 (2008).
- [6] Sakata, K., Yamasaki, K. and Chuhjoh, K., Waste Water Treatment from Semiconductor Factory Using Micronanobubble Technology (in Japanese), Kankyo Joka Gijutsu, Vol. 6(11), 18-22 (2007).
- [7] Miyamoto, M., Matsui, H., Ueyama, S., Shibata, Y. and Kuzumoto, M., Non-Chemical Cleaning Technology by Utilizing Microbubble, Technical Report of Mitsubishi Electric Corporation (in Japanese), Vol. 82(8), 489-492 (2008).
- [8] Himuro, S., A New Washing Method Using Microbubbles, Progress in Multiphase Flow Research, Vol. 2, 39-45 (2007).
- [9] Serizawa, A., Clarification of Oil Contaminated Soil Using Microbubbles (in Japanese), Kagaku Kōgaku, Vol. 71(3), 174-177 (2007).
- [10] Yasui F., Tamura, H., Sekiguchi, K. and Morinaga, W., Study on Decomposition of Organic Substances Using Micro Bubble-Photocatalyst in Liquid Phase, Proc. of Annual Meeting 2008 of the Japanese Society for Multiphase Flow, 76-77 (2008).
- [11] Kamiyama, N., The Latest Technology for Bubble Imaging, Japanese Journal of Medical Ultrasonics, Vol. 34 Supplement, S161 (2007).
- [12] Taniyama, Y., Ogihara, T. and Morishita, R., Development of Gene Therapy with Ultrasound and Microbubbles, Japanese Journal of Medical Ultrasonics, Vol. 34 Supplement, S294 (2007).
- [13] Iida, N., Kaneko, Y., Maruyama, T., Takagi, S. and Matsumoto, Y., Japanese Journal of Medical Ultrasonics, Vol. 34 Supplement, S271 (2007).
- [14] Sakamoto, T., Sonoda, S., Yamashita, T., Suzuki, R., Maruyama, K. and Tachibana, K., Drug Delivery by Sonoporation with Microbubbles for Ocular Diseases, Japanese Journal of Medical Ultrasonics, Vol. 34 Supplement, S168 (2007).
- [15] Nakatake, Y., Watanabe, T. and Eguchi, T., Combustion Improvement for Diesel Engines with Ejector-Type Micro-Bubble Mixed Fuel (Thermal Engineering), Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers B, Vol. 73(735), 196-202 (2007).
- [16] Kamiirisa, H. and Goto, H., Ship Drag Reduction Using Micro Bubbles, Proc. of Annual Meeting 2008 of the Japanese Society for Multiphase Flow, 80-81 (2008).
- [17] Terasaka, K., Microbubble Generators and Industrial Applications (in Japanese), Kagaku Kōgaku, Vol. 71(3), 170-173 (2007).
- [18] Terasaka, K., Method and Apparatus for Formation of Bubbles or Droplets into Liquid Phase (in Japanese), Japanese Patent NO. 4046294 (2007).
- [19] Kamei, S. and Hirata, M., Condensing Phenomena of Single Vapor Bubble into Subcooled Water (1st Report, Flow Visualization), Trans. JSME, B, Vol. 53(486), 464-469 (1987).
- [20] Koizumi, Y., Ohtake, H., Ogawa, T., Hasagawa, H. and Mori, M., Study on Condensation Heat Transfer of Steam Bubbles into Stagnant Water for Steam Injector Development, Proc. of 9th JSME Power and Energy Technology Symposium, 517-520 (2004).
- [21] Mori, R., Abe, Y., Hoshi, Y. and Ishikawa, I., Study the Effect of Non-condensable Gas on a Steam Bubble Condensation Heat Transfer, Proc. of JSME Thermal Engineering Conference 2005, 131-132 (2005).
- [22] Gulawani, S. S., Deshpande, S. S., Joshi, J. B., Shah, M. S., Prasad, C. S. R. and Shukla, D. S., Submerged Gas Jet into a Liquid Bath: A Review, Ind. Eng. Chem. Res., Vol. 46, 3188-3218 (2007).
- [23] Tadaki, T. and Maeda, S., The Size of Bubbles from Single Orifices, Kagaku Kōgaku, Vol. 27, 147-155 (1963).