

Raschig ring 充填層通過の液流れによる微細気泡(マイクロバブル)の生成

—Raschig ring の厚さの影響—

宮原 敏郎・永谷 尚紀・片山 慎也・長尾 一孝*

岡山理科大学 工学部 バイオ・応用化学科

* 岡山理科大学 技術科学研究所

(2010年9月13日受付、2010年11月9日受理)

緒 言

気液接触装置は、培養槽への酸素供給を目的とする発酵プロセス、石油炭化水素類の酸化、芳香族炭化水素のハロゲン化などに幅広い分野で使用されている。これらの装置での効率の改善策として、微小気泡（マイクロバブル）を用いて、気液接触面積の増大が図られている。また、環境分野でも、富栄養化による湖沼や河川の水質悪化の浄化策として、マイクロバブルの曝気による水質改善が試みられている。

このように、化学工業分野や環境分野で、最近、径 1mm 以下のいわゆるマイクロバブルの生成に関する研究がなされている。これまで微細気泡を生成するため、気泡塔、気泡攪拌槽などの様々な気液接触装置が考案されてきた。しかし、微細気泡を生成することは非常に困難で、これらの装置にも限界がある。また、装置内で腐食性のある物質や固体粒子が取り扱われることもあることから、装置形状の簡単なことが、操作、経済的観点からも要求されよう。

このような目的から、Sevik and Park (1973)および Unno and Inoue (1980)はオリフィス混合機を提案した。前者は乱流による気泡の分裂に関する研究であり、後者はオリフィス混合機による微細気泡の生成を実験的に検討し、適当な条件下では 0.3–0.4 mm 径の気泡の生成を確認している。一方 Miyahara *et al.* (1999a)はオリフィス混合機による分裂気泡群の気泡径分布を検討し、気泡径分布は Mugele and Evans (1951)の提案する upper limit log-normal probability function にほぼ従い、upper limit log-normal probability function の一変数である最大安定気泡径の相関を試みている。さらに、Miyahara *et al.* (1999b)は Unno and Inoue (1980)の板厚の厚いオリフィスでは、より小さな気泡が生成するとの報告から、ノズルからの乱流ジェットによる気泡の分裂を検討した。さらに、Miyahara and Akagi (1999)は実際に微細気泡を生成するには複数個の孔を有する混合機が実用に供せられると考え、2 孔を有するオリフィス板を用い、ジェットによる気泡の分裂に及ぼすピッチの影響を検討している。

Kaseno and Miyahara (2004)は親水性および疎水性球形粒子充填層に液を流し、充填層内に大きな剪断力場を形成させ、低液流量での乱流液流れによる気泡の分裂を検討し、親水性の場合、より小さな気泡の生成を確認した。しかし、球形粒子充填層では空隙率が小さいので、Miyahara (2005)は数種の市販の金属製充填物の充填層に液を流し、複雑な液流れおよび高剪断力場を形成させ、微細気泡の生成の検討から、Raschig ring 充填層の場合最も小さな気泡の生成を確認した。さらに Miyahara *et al.* (2007)は親水性のステンレス製の Raschig ring と疎水性のアクリル樹脂製の Raschig ring を用い、充填物の親水性および疎水性は微細気泡の生成には大きく影響しないことを見出している。続いて、Miyahara and Nagatani (2009)は、これまでの検討は単一気泡の分裂に対するものであることから、ガス速度および液物性の分裂微細気泡群の大きさに関する影響を検討している。さらに Miyahara *et al.* (2010)は界面活性剤水溶液中での微細気泡生成の検討を行っている。

本研究では、これに続き、厚みの異なるステンレス製 Raschig

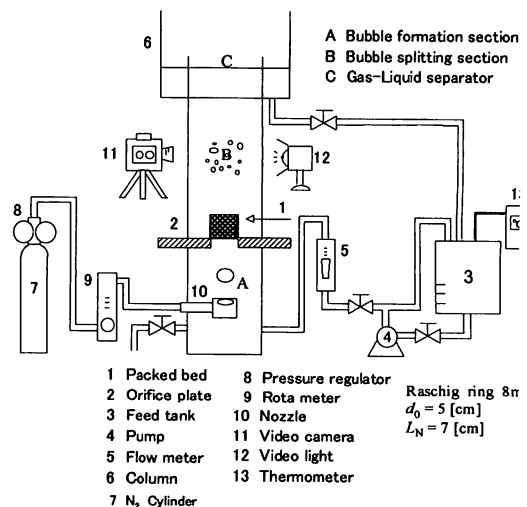


Fig. 1 Experimental apparatus

ring を用い、充填層通過の液流れによる微細気泡（マイクロバブル）生成への Raschig ring の厚さの影響を検討することを目的とした。

1. 実験装置と方法

本実験で使用する装置の概略を Figure 1 に示す。充填層内径 d_0 は 5 cm、充填高さ L_N

は 7 cm である。充填物として 8 mm のステンレス製の Raschig ring をランダム充填して用いた。充填層の高さは予備実験より決定した。その詳細は前報(Kaseno and Miyahara, 2004)にも記載しているが、充填層の高さが 7 cm 以上では、充填層通過の液速度を変えても、分裂気泡群の体積平均径への充填高さの影響がほとんど見られなくなることから決定した。塔本体は高さ 2.35 m の透明アクリル樹脂製で、気泡発生部 A、気泡分裂部 B および気液分離部 C で構成されている。塔底から 1 m 上部にジェット形成のための充填層を組み込んでいる。気泡発生部は内径 0.18 m、高さ 1 m の円筒で、気泡分裂部は内寸 0.19×0.19×0.95 m の直方体で、壁面はビデオカメラで気泡群の撮影ができるように平面構造になっている。気液分離部は内寸 0.39×0.39×0.545 m の正方形断面を持つ直方体である。充填層の上部および下部に厚さ 2 mm のアクリル板を間隔 8 mm で接着固定し、格子として充填物を固定した。この格子が分裂気泡の大きさに影響しないことを予め確認した。

まず、連続相である水は、貯水槽からポンプを用いて、流量計で流量調節された後、塔下部に入り、循環される。分散相であるガスは N_2 シリンダーからの窒素ガスを用い、圧力調整器で調圧され、流量計を通り、塔底から 50 cm の位置に取り付けられた 3 mm 径のノズルから気泡として分散され、充填層通過の際微小な気泡群に分裂する。充填層通過のガス（気泡）はほぼ充填層の中心部を通り分裂する(Kaseno and Miyahara, 2004)。

Raschig ring としては大きさ 8 mm のもので厚みの異なる 6 種類のものを用いた。使用した水の物性および Raschig ring の詳細を Table 1 に示す。この表から水の密度および表面張力はさほど変化はないが、粘度が使用水温により異なる。

本実験で分裂気泡群の気泡径測定位置は、Unno and Inoue (1980)の測定高さが 30 cm 以上では気泡群の体積平均径がほぼ変化しなくなるとの報告から、測定位置を充填層底部から 40 cm とした。分裂気泡群のビデオ撮影には、シャッター速度 1/15000 s を有するビデオカメラ(Digital Video Camera XL1, Canon)を用い、気泡分裂部の中央に設置したスケールとともに撮影し、モニターに写し、ノギスによりピントの合っている気泡の径を測定した。測定する気泡の個数は 200 個とした(Miyahara *et al.*, 1983)。なおここで、気泡が球形でないので、気泡を回転楕円体とみなし、次式から球相当径を求めた。

$$d_b = \sqrt[3]{d_{bl}^2 \times d_{bs}} \quad (1)$$

ここで、 d_{bl} と d_{bs} は気泡の長径と短径である。短径は回転軸上にある。Equation (1)から気泡体積 V_b が得られ、体積平均径が次式から算出される。

$$d_{30} = \left(\frac{\sum 6V_b / \pi}{n} \right)^{1/3} \quad (2)$$

ここで、 n は気泡の個数である。なお本実験で使用する充填層通過の液空塔速度は 0.17–0.76 m/s である。

Table 1 Physical properties of water and geometry of Raschig rings employed

Density [kg/m ³]	Viscosity [mPa.s]	Surface tension [N/m]	Temperature [°C]	Thickness of Raschig ring [mm]	Remarks
996.8	0.885	72	26	0.5	Stainless steel
997.4	0.935	72	24	0.8	
998.0	0.990	72	21	1.0	
998.6	1.070	72	18	1.2	Brass
998.9	1.120	72	16.4	1.5	
999.6	1.230	72	11.5	2.0	

Raschig ring 8 mm

2. 結果と考察

2-1 気泡分裂模様

充填層下の気泡は、充填層内での液の複雑な流れによる強い剪断を受け、変形を繰り返し、分裂する。さらに充填層からのジェット領域に入ると、気泡はジェット内での強い剪断を受け分裂する。このことから、充填層通過による気泡は充填層内とジェット内の 2 ヶ所の剪断力場で分裂すると考えられる。

Figure 2 に Raschig ring の大きさ 8 mm で厚さ 0.5 mm の場合、充填層通過の液速度 U_L を変化させた場合の気泡分裂模様の写真を示す。 $U_L = 0.25$ m/s と空塔液速度の小さい場合には分裂気泡群の大きさはかなり大きいことが同われる。しかし、液速度 $U_L = 0.76$ m/s と大きくなると強い剪断力を受けて、微細な気泡を確認できる。特に液速度の大きい場合、径 1 mm 以下のいわゆるマイクロバブルの生成をも認められる。

2-2 分裂微細気泡群の体積平均径

気泡群の体積平均径を Equation (2) から計算し、空塔液速度に対して点綴したものを Figure 3 に示す。図より空塔液速度の増加により、分裂気泡群の体積平均径は小さくなる。ここで注目すべきは、いずれの Raschig ring の場合にも、いわゆる径 1 mm 以下のマイクロバブルの生成を確認できることである。また Raschig ring の厚さが大きくなると、本実験の全液流速の範囲で体積平均径は小さくなっている。体積平均径に差異が認められるのは、Raschig ring の厚さが増すと、充填層内の空隙率が減少し、実際の充填層内での液流速の増加に起因するものと考えられる。この図は分裂気泡群の体積平均径を示したものである。Figure 2 から体積平均径以下の小さな気泡の生成も認められることから、本装置の使用により、マイクロバブルは充分生成可能である。

前報(Miyahara *et al.*, 2007)で、Raschig ring 充填層を用いて得られる微細気泡の体積平均径は、Raschig ring の大きさおよび液のレイノルズ数で相関されると報告している。Figure 3 の結果を基に、体積平均径の相関を試みたものが Figure 4 である。図中の実線は次式で示される Miyahara *et al.* (2007) の結果である。参考のため図中に示してある。

$$d_{30}/d_p = 4.22 \times 10^4 Re_L^{-1.3} \quad (3)$$

ここで、 $8000 < Re_L < 40000$ である。図より Raschig ring の厚さの小さい 0.5 mm の場合には既往の結果(Miyahara *et al.*, 2007)と良く一致している。

またこの図より分裂気泡群の体積平均径は Raschig ring の厚さの影響を受けていることから、Raschig ring の厚さを考慮して、相関を試みたのが Figure 5 である。本実験で得られた結果は、液側レイノルズ数および Raschig ring の厚さと大きさの比でうまく相関されていることが分かる。

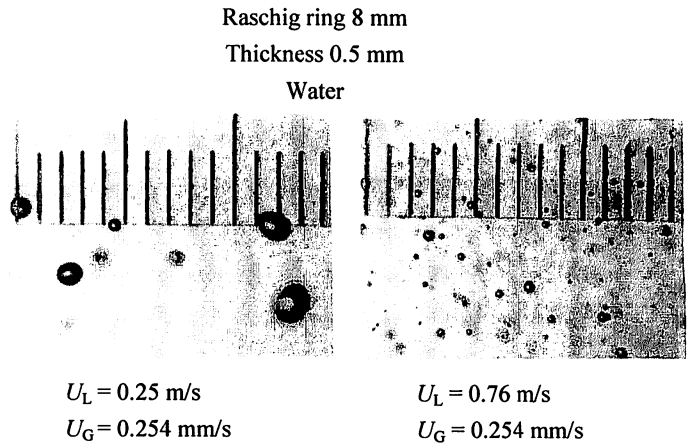


Fig. 2 Photographs of splitting bubbles

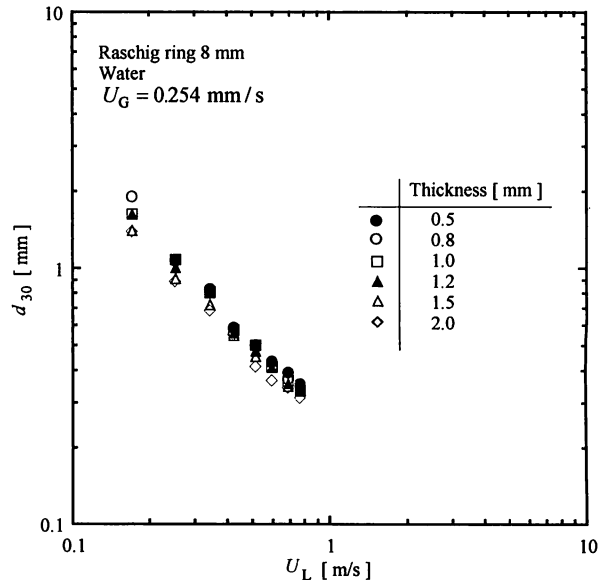


Fig. 3 Volumetric mean diameter of splitting bubbles

2-3 分裂気泡群の気泡径分布

本研究での充填層通過の液流れによる剪断力により, Raschig ring の厚さを変えた場合の微細気泡の生成を考察すると, マイクロバブルの生成も充分可能である. しかし, 生成分裂気泡群はかなりの気泡径分布を持つことが分かる. 実際にマイクロバブルを化学工業分野や環境分野に適用する場合, マイクロバブル曝気による液混合および気泡群からの液中への物質移動が解明されなくてはならない. そのためには, 分裂気泡群の気泡径分布が如何になるかを知ることが必要不可欠となる.

Figure 6 は Raschig ring の厚さ 1.5 mm の場合, 充填層通過の液速度を変化させた場合の気泡径分布を対数確率紙に点綴したものである. 図より, 液速度の増加により, 気泡径分布は左にシフトしている. すなわち気泡の大きさは小さくなっている. しかし, 気泡径分布は対数確率紙上で直線ではない. すなわち, 分裂気泡群の気泡径分布は対数正規分布では説明できないことが伺われる. 特に気泡径が大きい領域でこの傾向が顕著である. 対数正規分布の確率密度関数は次式で与えられる.

$$\frac{dv}{dy} = \frac{\delta}{\sqrt{\pi}} \exp(-\delta^2 y^2) \quad (4)$$

Equation (4)を積分すると

$$v = 1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{\delta y}^{\infty} \exp(-X^2) dX = \frac{1}{2} \{1 + \operatorname{erf}(\delta y)\} \quad (5)$$

対数正規分布の変数 y は

$$y = \ln\left(\frac{d_b}{\bar{d}_b}\right) \quad (6)$$

ここで, \bar{d}_b は幾何平均である. 本実験結果が対数正規分布で説明できないのは気泡径を 0 から $+\infty$ まで分布しているとしているためである. 実際には気泡径は 0 からある有限値 $d_{b\max}$ (最大安定気泡径) の間で分布すると考えたほうが妥当であろう. Mugele and Evans (1951) はこのことを考慮し, upper limit log-normal probability function を提案している. すなわち, Eq.(4)中の y を次式で定義している.

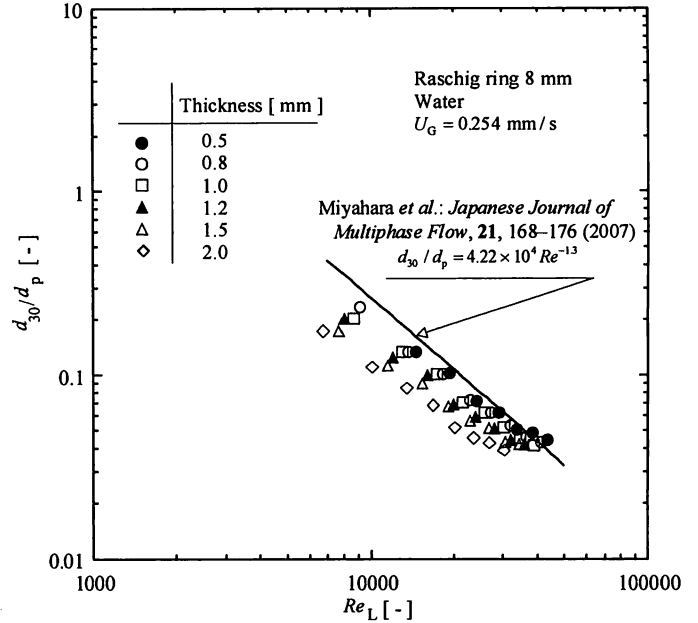


Fig. 4 Correlation of volumetric mean diameter of splitting bubbles

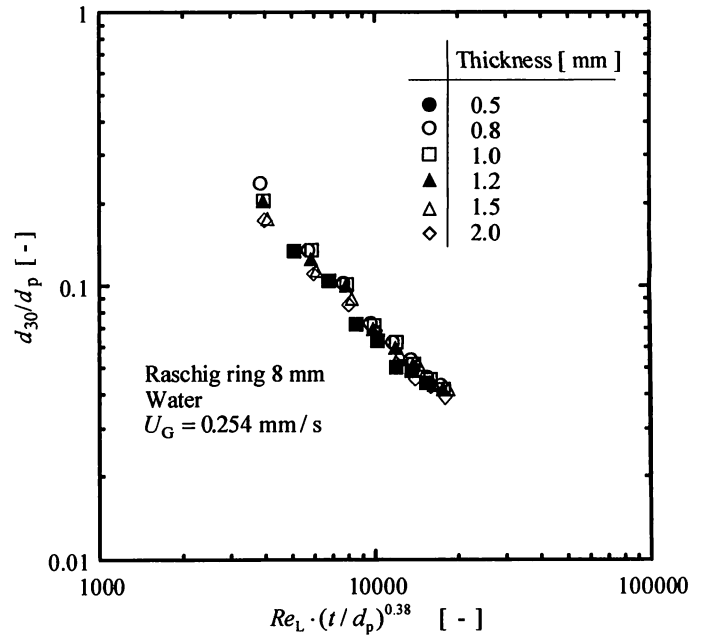


Fig. 5 Correlation of volumetric mean diameter of splitting bubbles

$$y = \ln\left(\frac{ad_b}{d_{b\max} - d_b}\right) \quad (7)$$

ここで

$$a = \frac{d_{b\max} - d_{b50}}{d_{b50}} \quad (8)$$

三つのパラメータ a , δ , $d_{b\max}$ が分布を決定するに必要であり、これらはデータから、次式を用いて求められる。

$$\delta = \frac{0.394}{\log_{10}\left(\frac{d_{b90}}{d_{b\max} - d_{b90}} \times \frac{d_{b\max} - d_{b50}}{d_{b50}}\right)} \quad (9)$$

$$\frac{d_{b\max}}{d_{b50}} = \frac{d_{b50}(d_{b10} + d_{b90}) - 2d_{b90}d_{b10}}{d_{b50}^2 - d_{b90}d_{b10}} \quad (10)$$

また、気泡群の体積平均径と最大安定気泡径の間には三つのパラメータが決まれば次式の関係がある。

$$d_{30} = \left\{ 1 + 3a \exp\left(\frac{1}{4\delta^2}\right) + 3a^2 \exp\left(\frac{1}{\delta^2}\right) + a^3 \exp\left(\frac{9}{4\delta^2}\right) \right\}^{-1/3} \times d_{b\max} \quad (11)$$

Figure 6 の結果を upper limit log-normal probability function で整理したものが Figure 7 である。upper limit log-normal probability function でデータがほぼ一直線で表されている。なお、他の実験条件のものも Figure 7 と同じ結果が得られた。換言すれば、厚さの異なる Raschig ring 充填層通過の液流れによる微細気泡（マイクロバブルを含む）の気泡径分布はほぼ upper limit log-normal probability function に従うといえよう。Figure 7 の場合 $a = 1.08$ および $\delta = 1.00$ が図より得られる。従って、Figure 5 の相関関係より d_{30} を求め、Eq.(11) から $d_{b\max}$ を計算し、実験データより、パラメータ a , δ を得ると分布の全貌が判明する。

結 言

化学工業や環境分野に有効とされる Raschig ring 充填層通過の液流れによる微細気泡（マイクロバブル）の生成に及ぼす Raschig ring の厚さの影響を明らかにする目的で、厚さの異なるステンレス Raschig ring 充填層に、充填層通過の液速度を変え、充填層通過の液流れによる微細気泡生成に関する実験的検討から、以下の結果を得た。

- 1) Raschig ring の厚さを変えても、充填層通過の液速度を大きくすると、マイクロバブルの生成は可能である。
- 2) Raschig ring の厚さが増すと、全実験充填層通過の液速度で、分裂気泡群の気泡径は小さくなる。
- 3) 充填層通過の液流れにより生じる Raschig ring の厚さを変えた場合の分裂微細気泡群の体積平均径に対する相関関係を得た。
- 4) Raschig ring の厚さを変えた場合、充填層通過の液流れによる生成分裂気泡群の気泡径は分布を持ち、upper

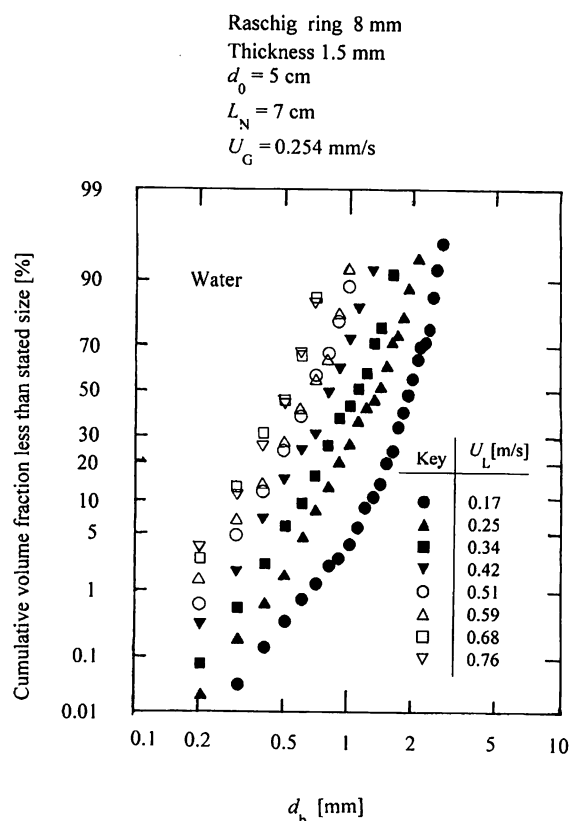


Fig. 6 Size distribution of splitting bubbles based on log-normal probability function

limit log-normal probability function にほぼ従う。

Nomenclature

- a = parameter in upper-limit function
 d_{30} = volumetric mean diameter of bubbles, m
 d_b = bubble diameter, m
 d_{bmax} = maximum stable bubble diameter, m
 d_{bl} = major axis of bubble, m
 d_{bs} = minor axis of bubble, m
 $\overline{d_b}$ = geometric mean diameter of bubbles, m
 d_o = diameter of packed bed, m,
 d_{b10} = bubble diameter at $v = 0.1$, m
 d_{b50} = bubble diameter at $v = 0.5$, m
 d_{b90} = bubble diameter at $v = 0.9$, m
 d_p = size of Raschig ring, m
 L_N = packing height, m
 n = number of bubbles
 t = thickness of Raschig ring, m
 V_b = bubble volume, m^3
 Re_L = liquid Reynolds number ($= d_o U_L \rho_L / \mu_L$)
 U_G = superficial gas velocity through packed bed, m/s
 U_L = superficial liquid velocity through packed bed, m/s
 v = cumulative volume fraction less than stated size
 y = dimensionless function of bubble diameter

Greek letters

- δ = parameter in upper-limit function
 ρ_L = density of liquid, kg/m^3
 μ_L = viscosity of liquid, Pa.s
 σ = surface tension, N/m

Literature Cited

- Kaseno, S. and T. Miyahara; "Bubble Splitting by Liquid Flow through Hydrophilic or Hydrophobic Particle Packed Bed," *Japanese J. Multiphase Flow*, **18**, 246–254 (2004)
 Miyahara, T.; "Production of Micro-Bubbles by Liquid Flow through Packed Bed," *Water Purification and Liquid Wastes Treatment*, **46**, 209–215 (2005)
 Miyahara, T. and Y. Akagi; "Bubble Splitting by Turbulent Jet Emitted from Two-Hole Orifice," *The Bulletin of Okayama University of Science*, No.35A, 223–229 (1999)
 Miyahara, T., Y. Matsuba and T. Takahashi; "The Size of Bubbles Generated from Perforated Plates," *Int. Chem. Eng.*, **23**, 517–523 (1983)
 Miyahara, T., S. Hashimoto, H. Matsunaga and Y. Akagi; "Bubble Splitting by Turbulent Jet Emitted from Orifice," *J. Chem. Eng. Japan*, **32**, 91–96 (1999a)
 Miyahara, T., H. Matsunaga and Y. Akagi; "Bubble Splitting by Turbulent Jet Emitted from Nozzle," *J. Chem. Eng. Japan*, 704–707 (1999b)
 Miyahara, T., N. Nagatani, S. Shimada and K. Daikoku; "Bubble Size Distribution of Splitting bubbles Formed by Liquid Flow through Raschig Ring Packed Bed," *Japanese J. Multiphase Flow*, **21**, 168–176 (2007)
 Miyahara, T., N. Nagatani, H. Matsumoto and K. Nagao; "Effect of Surfactant on Production of Fine Bubbles (Micro-Bubbles) by Liquid Flow through a Rashid Ring Packed Bed," *The Bulletin of the Research Institute of Technology of Okayama University of Science*,

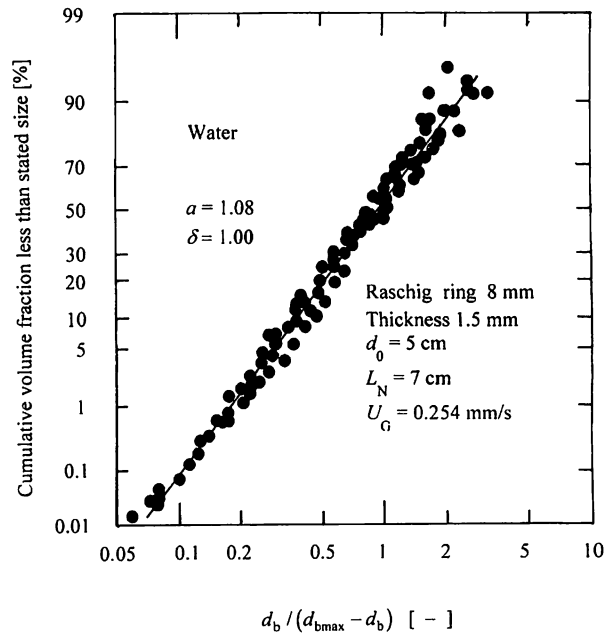


Fig. 7 Size distribution of splitting bubbles based on upper limit log-normal probability function

No. 28, 40–46 (2010)

Miyahara, T. and N. Nagatani; “Production of Fine Bubbles by Liquid Flow through a Raschig Ring Packed Bed —Effect of Gas Flow Rate and Physical Properties of Liquid—,” *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **35**, 345–350 (2009)

Mugele, R. A. and H. D. Evans; “Droplet Size Distribution in Sprays,” *Ind. Eng. Chem.*, **43**, 1317–1324 (1951)

Sevik, M. and S. H. Park; “The Splitting of Drops and Bubbles by Turbulent Fluid Flow,” *Trans. ASME, J. Fluid Eng.*, **95**, 53–60 (1973)

Unno, H. and I. Inoue; “Size Reduction of Bubbles by Orifice Mixer,” *Chem. Eng. Sci.*, **35**, 1571–1579 (1980)

Fine Bubble (Micro-Bubble) Formation by Liquid Flow through a Raschig Ring Packed Bed

— Effect of Thickness of Raschig Ring—

Toshiro MIYAHARA, Naoki NAGATANI, Shinya KATAYAMA and Kazutaka NAGAO*

Department of Applied Chemistry and Biotechnology,

Faculty of Engineering,

** Research Institute of Technology,*

Okayama University of Science,

1-1, Ridai-cho, Kita-ku, Okayama-shi, Okayama 700-0005, Japan

(Received September 13, 2010; accepted November 9, 2010)

Experiments were carried out to understand the effect of thickness of Raschig ring on the fine bubble (micro-bubble) formation by the liquid flow through a Raschig ring packed bed. As a result, the increase in thickness of Raschig ring causes fine bubbles (micro-bubbles) having diameter less than 1 mm, and volumetric mean diameter of fine bubbles can be correlated by size of packing, liquid Reynolds number and thickness of Raschig ring. Furthermore, the measured size distribution of fine bubbles was found to be well represented by an upper limit log-normal probability function.

Keywords: splitting bubble; micro-bubble; Raschig ring; thickness; packed bed; upper limit log-normal probability function.