

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601  
研究種目：若手研究(A)  
研究期間：2014～2016  
課題番号：26709033  
研究課題名(和文) マイクロバブルの土壌内移動の解明と運命予測

研究課題名(英文) Transport and fate of micro-bubble in soil

## 研究代表者

濱本 昌一郎 (Hamamoto, Shoichiro)

東京大学・農学生命科学研究科・准教授

研究者番号：30581946

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,500,000円

研究成果の概要(和文)：近年、微細気泡(ファインバブル, FB)の地盤環境工学分野における利用が注目されている。本研究では、土壌内での微細気泡移動機構の解明と移動モデルの構築を目的とした。ガラスビーズ充填カラムへのFB水注入実験を実施した結果、FBは通水中にカラム内に捕捉され、捕捉率は低流速条件で大きいことが分かった。また、初期気泡密度が高く、電位の低い酸素FBの方が空気FBよりもカラム内に捕捉されにくい結果が得られた。FBのガラスビーズへの吸着・脱離・捕捉を考慮した移動モデルで実験結果を再現することができた。

研究成果の概要(英文)：Potential applications of fine bubbles (FBs) have drawn more attention, especially in environmental engineering fields such as soil/groundwater remediation. Understanding a transport mechanism of FBs in soils is essential to optimize remediation techniques using FBs. In this study, transport characteristic of FBs in soils was investigated based on the column transport experiments. In addition, a transport model of FBs was tested. The column transport experiments using glass beads were conducted, where UFBs created by either air or oxygen were injected to the column with different flow conditions. The results showed that attachments of FBs were enhanced under lower water flow rate. In addition, the mobility of O<sub>2</sub>-FBs which has lower zeta potential was higher than that of Air-UFBs. A convection-dispersion model including bubble attachment and detachment terms was applied to the obtained breakthrough curves for each experiment, showing good fitness against the measured data.

研究分野：地盤環境工学

キーワード：微細気泡 多孔質体 移動メカニズム 土壌

1. 研究開始当初の背景

国内外の各地で土壌・地下水汚染問題が顕在化している。特に、石炭系炭化水素、油分、および PCB (有機塩素化合物) 等の有害物質による汚染が深刻化しており、汚染土壌の効率的な浄化手法の確立が不可欠である。汚染土壌の浄化手法の中でも、近年、ナノ・マイクロバブル (以後、微細気泡または FB) を用いた浄化法が注目されている。微細気泡は気泡径がおよそ数 nm ~ 10 $\mu$ m 程度で、表面積が大きく、液体中の滞留時間も長くなるため分散性に優れ、気液界面での物理的吸着効果や土粒子に吸着した油成分の剥離効果を利用した土壌中の汚染物質の分離・浄化が可能である。また、微細気泡を含む水を地盤に注入することで、地盤環境を好氣的環境が促進され、汚染物質を分解する好気性細菌を活性化させることが期待される。その際にも微細気泡の高い移動性はこれら原位置バイオレメディエーションの効率性上昇に大きく貢献する。これまで、油汚染土壌を中心として、微細気泡を含む気泡水を用いた浄化事例が室内実験・フィールド実証実験で報告されている。

土壌浄化に微細気泡を利用する際には、微細気泡の土壌内移動とその運命予測が重要な鍵を握る。しかし、これまでに行なわれている研究の大半は微細気泡による汚染物質の浄化 (分離) 能力に注目したものであり、微細気泡の土壌内移動メカニズムに関しては、学術的に十分理解されていない点が多い。さらに、微細気泡の移動領域の推定や汚染物質担体輸送の予測に活用できるモデル構築に関する研究も極めて少ないのが現状である。

2. 研究の目的

微細気泡の土壌内移動機構を明らかにし、微細気泡移動モデルを構築することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は、「1. 微細気泡の理化学性評価」、「2. カラム実験による微細気泡移動機構の解明」、「3. 微細気泡の土壌内移動モデルの構築」から成る。

「1.」では、空気、酸素ガスで生成した微細気泡を用いて、気泡径分布や表面電位を測定し、これら気泡特性の pH や電解質濃度依存性について調べた。「2.」では、ガラスビーズを充填したカラムを用いて微細気泡水注入実験を行い、ガス種や流速条件が微細気泡水の流出特性に与える影響について調べた。「3.」では、「2.」で得られた結果をもとに、多孔質体内の微細気泡挙動を再現できる物理モデルを検討した。

4. 研究成果

(1) 微細気泡の理化学性評価

本研究では、商業用の空気および酸素微細

気泡 (FB) 水を用いた。表-1 に FB 水の物性値を示す。ナノ粒子径分布測定装置 SALD-7500nano (島津製作所) を用いて得られた空気 FB および酸素 FB 水の平均気泡径はともに約 300 nm であった。電位は酸素 FB の方が低く、空気 FB に比べより負に帯電していることが分かった。生成した FB 水の pH および電解質濃度条件を変化させた結果、pH が低下または電解質濃度が増加するにつれて、表面電位は増加し、平均気泡径が増加する傾向がみられた。

表 1. 本研究で用いた微細気泡水特性

ガス種	空気	酸素
気泡密度 (個/mL)	$4.44 \times 10^6$	$1.21 \times 10^7$
初期溶存酸素量 (mg/L)	7.37	40.4
初期濁度 (NTU)	0.8	1.2
ζ電位 (mv)	-44	-55

(2) カラム実験による微細気泡移動機構の解明

上記、商業用の空気・酸素 FB 水を用いたカラム通水実験を実施した。FB 水に NaHCO<sub>3</sub> を加え、pH を 8 付近に調整したものを注入 FB 水として用いた。カラムへの充填試料には、濃硝酸および過酸化水素水で十分洗浄した平均粒径 0.1 mm のガラスビーズを用いた。直径 5 cm、高さ 10.1 cm のアクリル製カラムに所定の乾燥密度 (間隙率 34%) で試料を充填した。別途測定したガラスビーズ試料の保水性試験から、試料の平均間隙径は 150  $\mu$ m 程度であり微細気泡径よりも十分大きいことが確認されている。図-1 に実験装置概念図を示す。

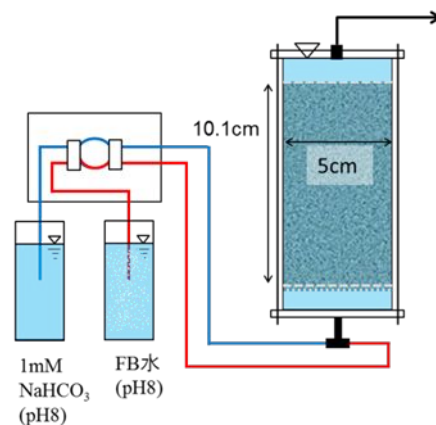


図 1. カラム実験装置概要

ガラスビーズを充填したカラムに pH 3 に調整した HCl 溶液を通水し、ガラスビーズ由来のアルカリ成分を中和した。その後、NaHCO<sub>3</sub> を用いて pH 8 に調整した水溶液 (1 mM NaHCO<sub>3</sub>, EC = 88  $\mu$ S/cm) をカラム下端から上端へと十分通水させた後、FB 水に

切り替え約 5 PV (PV: 流出量/間隙体積) 通水した。FB 水通水後、再度 1 mM NaHCO<sub>3</sub> 水溶液に切り替え、約 8 PV 通水した。最後に、純水 (EC = 0, pH = 6) を約 5~8 PV 通水した。実験は一定流量条件で実施し、通水中の流出液を一定時間ごとに採水した。流量は 7.0 および 3.5 cm<sup>3</sup>/s の二条件で実施した。採水後すぐに、採水液の pH、電気伝導度 (EC)、溶存酸素濃度 (DO)、濁度を測定した。さらに SALD-7500nano を用いて、流出気泡の気泡径分布および個数濃度を測定した。なお、予備試験結果から、濁度と気泡濃度には明瞭な線形関係が得られたことから、本研究では濁度を気泡濃度の間接的な指標として用いた。

図-2 に、空気 FB を用いた場合の流出液の相対濁度変化を示す。両流量条件ともに、FB 水注入後約 1PV 程度で相対濁度は急激に増加した。高流量条件 (7.0 cm<sup>3</sup>/s) では、濁度の立ち上がり後、相対濁度 0.6 付近でほぼ一定の濁度を示したものの、低流量条件 (3.5 cm<sup>3</sup>/s) では、相対濁度 0.4 から 0.5 までなだらかに増加した。この結果から、流速条件は微細気泡のカラム内での補足に大きく影響を与え、特に低速条件の方が補足率が増加することがわかった。また、NaHCO<sub>3</sub> 水溶液に切り替えた後も、低流速条件の方が高流速条件に比べなだらかに濁度は減少する結果が得られた。NaHCO<sub>3</sub> 水溶液中の DO 値は約 6.5 mg/L であり、FB 水の DO 値 (表-1) に比べて低い。流出液の溶存酸素 (DO) 濃度の経時変化は、濁度変化と同様な傾向を示した。この結果から、溶存酸素挙動は微細気泡の挙動に追従して生じていることが示唆された。なお、通水中の流出液の EC・pH はほぼ一定値を示した。

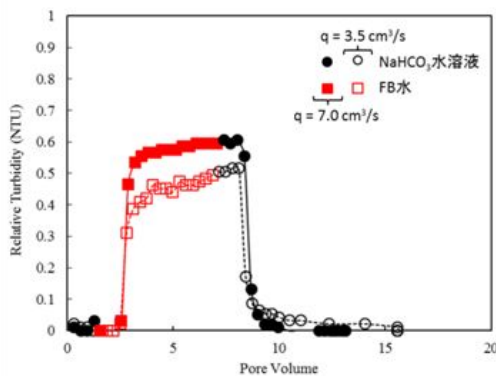


図 2. 流出液の相対濁度変化

図-3 に、純水 (EC = 0, pH = 6) 注入時における EC および相対濁度の時間変化を示す (空気 FB を用いた実験)。EC 値の低下に伴い、両流速条件ともに相対濁度は急激に増加し、その後なだらかに低下した。この結果は、注入水のイオン強度が低下することで、ガラスビーズに補足されていた微細気泡が分散状態となり流出したためと考えられる。流入および流出相対濁度の積算値を算出した。結

果、純水による微細気泡の洗い流し後、投入微細気泡量の内、高速条件では約 33%、低流速条件では約 41%がカラム内に補足されたことがわかった。低流速条件では、ガラスビーズ粒子周囲の停滞水域(stagnant region)が増加し、微細気泡の粒子への補足が促進したことが考えられる。土壌コロイドを用いたカラム通水実験についても低流速条件でコロイドの補足率が増加する結果が報告されている。

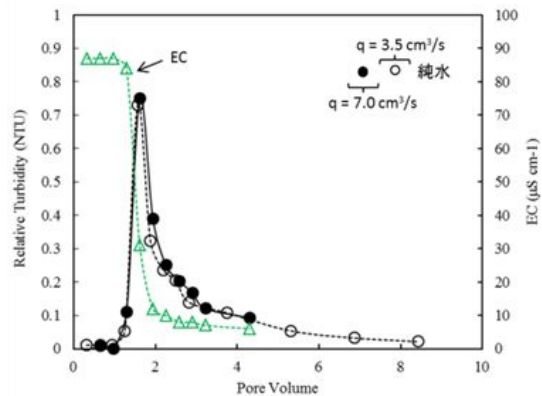


図 3. 純水注入時の流出液の相対濁度変化

流出液の気泡径分布を測定した結果、FB 水注入後初期の流出液で平均気泡径が大きく幅広い径分布を有する気泡が確認されたものの、その後流出が進むのに伴い平均気泡径は減少し、均一な径分布を有する気泡が流出した。この結果から、微細な気泡程カラム内をより遅く移動し、カラム内に補足され易いことが示唆された。

また、空気 FB と酸素 FB では、酸素 FB の方が空気 FB に比べてより流出する結果が得られた。この原因として初期気泡密度が高いことや酸素 FB の方が表面電位が低いことが考えられた。

### (3) 微細気泡の土壌内移動モデルの構築

(2)で得られた実験結果をもとに、流出液の相対濁度変化を再現できる物理モデルを検討した。濁度 (FB 濃度) の時間変化を、水による移流、分散、FB のガラスビーズへの可逆的な付着・脱離、FB のガラスビーズへの非可逆的な物理的捕捉、のメカニズムを考慮したモデルで検討した。結果これらのメカニズムを考慮することで、精度良く(2)で得られた流出濁度曲線を再現できることがわかった。また、得られたパラメータから FB のガラスビーズへの補足メカニズムとして、非可逆的な物理的捕捉が大きく寄与していることが示唆された。物理パラメータと気泡特性 (平均気泡径、表面電位、個数密度) や多孔質体特性 (間隙径、間隙率、表面電位) との関係性については今後さらに調べる必要があると考えられる。

## 5. 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕(計 2 件)

Hamamoto, S., N. Nihei, Y. Ueda, P. Moldrup, and T. Nishimura. 2017. Effects of Flow Rate and Gas Species on Microbubble and Nanobubble Transport in Porous Media. J. Environ. Eng., 査読有, 143:7, 1-7

中澤博志, 前田幸男, 濱本昌一郎, 須佐見彩加, 永尾浩一, 神宮司元治, 山田眞一, 青山翔吾, 田端憲太郎, 2 種類の気泡を用いた不飽和砂質土の液状化強度特性, 第 12 回地盤改良シンポジウム論文集, 査読有, (2-9), 2016

### 〔学会発表〕(計 12 件)

濱本昌一郎, モデル土壌カラムにおけるナノバブルの移動特性、高分子と水・分離に関する研究会および 2016 年度界面動電現象研究会, 東京, 2017 年 3 月 6 日(招待講演)

濱本昌一郎, 二瓶直登, 上田義勝, 土壌における微細気泡の包括的移動機構の解明, 第 366 回生存圏ミッションシンポジウム, 京都, 2017 年 2 月 23~25 日

竹村貴人, 鈴木健一郎, 長田昌彦, 濱本昌一郎, 二酸化炭素ファインバブル水と岩石の中和反応に関する実験的研究, 平成 28 年度日本応用地質学会研究発表会, 仙台, 2016 年 12 月 26 日~27 日.

濱本昌一郎, 多孔質体中のナノバブル移動特性、日本マイクロ・ナノバブル学会第 5 回学術総会, 東京, 2016 年 12 月 17 日(招待講演)

中澤博志, 前田幸男, 濱本昌一郎, 須佐見彩加, 永尾浩一, 神宮司元治, 山田眞一, 青山翔吾, 田端憲太郎, 2 種類の気泡を用いた不飽和砂質土の液状化強度特性, 第 12 回地盤改良シンポジウム, 京都, 2016 年 10 月 27 日~28 日.

濱本昌一郎, 土壌中のナノバブル移動特性に関する研究紹介, 平成 28 年度農林水産・食品産業マイクロ・ナノバブル技術研究組合シンポジウム, 東京, 2016 年 10 月 7 日(招待講演)

中澤博志, 前田幸男, 濱本昌一郎, 神宮司元治, 山田眞一, 気泡混入水による砂質土供試体の液状化強度特性, 土木学会第 71 回年次学術講演会, 仙台, 2016 年 9 月 7 日~9 日.

江尻 哲英, 濱本 昌一郎, 井本 博美, 西村 拓, Effects of Water Flux and

Bubble Characteristics on Nano-Bubbles Transport in Porous Media, 日本地球惑星科学連合大会, 幕張, 2016 年 5 月 22 日~26 日.

二瓶直登, 濱本昌一郎, 杉山暁史, 徳田陽明, 上田義勝, 大豆幼植物の各種イオン吸収へ及ぼす微細気泡水の影響, 日本作物学会 第 239 回講演会, 神奈川, 2016 年 3 月 27~28 日

濱本昌一郎, 二瓶直登, 上田義勝, 西村拓, 流速およびガス種の違いが多孔質媒体内の微細気泡挙動に与える影響, 2015 年度土壌物理学学会大会, 佐賀, 2015 年度 10 月 24 日

濱本昌一郎, 二瓶直登, 上田義勝, 西村拓, 多孔質媒体内の微細気泡挙動に関する基礎的研究, 第 50 回地盤工学研究発表会, 札幌, 2015 年 9 月 1 日~3 日.

上田 義勝, 徳田 陽明, 二瓶 直登, 濱本 昌一郎, 小川 雄一, 杉山 暁史, ナノ・マイクロ粒子および微細気泡の水中の挙動に関する研究, 日本混相流学会混相流シンポジウム, 高知, 2015 年 8 月 4 日~6 日.

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

濱本 昌一郎 (HAMAMOTO Shoichiro)  
東京大学・大学院農学生命科学研究科・准教授  
研究者番号: 30581946

### (2)研究分担者

### (3)連携研究者

### (4)研究協力者

二瓶 直登 (NIHEI Naoto)  
東京大学・大学院農学生命科学研究科・准教授  
研究者番号: 50504065

上田 義勝 (UEDA Yoshikatsu)  
京都大学・生存圏研究所・助教  
研究者番号: 90362417

竹村 貴人 (TAKEMURA Takato)  
日本大学・文理学部・准教授  
研究者番号: 30359591

中澤 博志 (NAKAZAWA Hiroshi)  
国立研究開発法人防災科学技術研究所・地震減災実験研究部門・主幹研究員  
研究者番号: 20328561