

平成 30 年 5 月 20 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H04176

研究課題名(和文) マイクロバブル混合スラリーの特異的固液分離挙動の解明と固液分離の高効率化

研究課題名(英文) Effects of microbubble addition on the sophistication of solid/liquid separation processes

研究代表者

岩田 政司 (IWATA, Masashi)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10151747

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：固液分離操作に対するマイクロバブル(MB)の添加効果を調査した。加圧溶解式MB発生機の吐き出し圧力が高いほど気泡のメジアン径は小さくなった。臨界直径以下の気泡は収縮し、臨界直径以上の気泡は膨張する。臨界直径以下の気泡に付着した懸濁粒子はMBの収縮に伴い、互いに接近し凝集する。しかしながら、この気泡の収縮過程は、粒子が付着していない気泡に比べ、かなり遅い過程であることが分かった。珪藻土を用いたプリコート濾過におけるプリコート層の調製時にMB含有水を用いると、プリコート層の寿命が飛躍的に伸びることを確認した。

研究成果の概要(英文)：Effects of microbubble addition to solid/liquid separation have been investigated. A pressurizing dissolving system was used to generate microbubble. The larger the discharge pressure of the generator, the smaller the median diameter of the bubble. There exists the critical diameter of the bubble; i.e., a bubble larger than the critical size always grows, while a bubble smaller than the critical size surely shrinks. The critical size depends on the dissolved gas concentration. Colloidal particles attached to a shrinking microbubble approach each other as the bubble shrinks, resulting in agglomerates of particles. This process requires several minutes when the bubble size is several ten micrometers. In precoat filtration using diatomaceous earth as precoat material, the addition of microbubble increases dramatically the filtration capacity of the precoat layer, provided that the precoat layer is carefully prepared.

研究分野：工学

キーワード：加圧溶解方式 気泡径 収縮 膨張 プリコート濾過

1. 研究開始当初の背景

(1)直径 100 μm 以下の気泡であるマイクロバブル (MB と略記) は、長期滞留性、自己加圧効果、表面の負帯電性などの特徴を有している。MB を用いた技術は水質浄化、水産業、医療などさまざまな分野で利用されており、今後さらに進展する可能性を有している。

(2) MB は、そのサイズに応じ、液中で収縮あるいは膨張挙動を示す。この特異な挙動を示す気泡が固液分離操作に与える影響は不明であるが、ケーキ濾過におけるケーキの剥離性の向上やプリコート濾過における濾過寿命の長期化などが報告されている。

2. 研究の目的

本研究では、マイクロバブルの固液系への添加効果を調査し、固液分離操作へ応用するための基礎的検討を行った。以下の観点より本研究を実施した。

(1) 加圧溶解式マイクロバブル (MB) 発生機により発生させたマイクロバブルの、気泡径の経時変化を調査し、気泡の収縮・膨張挙動を支配する因子を明らかにする。

(2) プリコート濾過におけるプリコート層の調製時に、マイクロバブル含有水を添加するとプリコート層が改質され、濾過時間 (捕捉粒子量) が延びる。プリコート層の改質に対する MB の役割を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) マイクロバブル (MB) の収縮・膨張挙動の調査

本研究では、加圧溶解方式 MB 発生機を用いて MB を発生させた。分散媒には浄水 (家庭用浄水器により水道水を濾過した水) を用い、種々の発生圧力で、水槽と発生機の間を循環させ、MB を発生させた。種々の循環時間で採取した MB 含有水をレーザー回折散乱式粒度分布計の測定用セルに入れ、気泡径分布を測定するとともに、セル内で放置した際

の気泡径分布の変化も測定した。一方、MB 含有水の溶存酸素濃度の経時変化を溶存酸素計により測定した。次いで、MB 含有水を透明な容器に入れ、容器の壁に付着した気泡径の経時変化をマイクロスコープおよび倒立位相差顕微鏡を用いて測定した。その際、容器の体積、気泡の位置から水面までの距離を種々変化させて測定を行った。さらに、メジアン径 15 μm のポリメチルメタクリレート (PMMA) 粒子懸濁液に MB 含有水を混合し、血球計算板の凹みに注入し、気泡に付着した PMMA 粒子の凝集過程を調査した。

(2) プリコート濾過におけるプリコート層調製時の MB 含有水の添加効果の調査とその効果の発現機構の解明

珪藻土プリコート層を調製し、水酸化鉄 (III) スラリーのプリコート濾過実験を行った。まず、加圧溶解方式 MB 発生機を用いて MB 含有水を調製し、これと珪藻土スラリーを混合しつつ、一定流量で、濾過機に供給しプリコート層を調製した。次いで、MB 発生器を止め、水槽内の水をプリコート層に一定時間供給し、プリコート層に水を透過させた。この操作により経路内に残った珪藻土が全てプリコートされる。最後に、約 100 ppm に調製した水酸化鉄スラリーを一定流量で濾過機に供給し、定速プリコート濾過を行った。濾液量、濾過圧力および濾液中の粒子濃度の経時変化を測定した。

4. 研究成果

(1) マイクロバブル (MB) の収縮・膨張挙動の調査

図 1 に加圧溶解方式 MB 発生機により発生させた MB 含有水を直ちに粒度分布計の石英セルに入れ、1 分経過した後の気泡のメジアン径を示した。MB の発生圧力が高いほど、気泡径が小さくなった。図 2 は、気泡のメジアン径と MB 発生機の運転時間との関係を示したものである。気泡径は、発生器の運転時

間によらずほぼ一定であった。

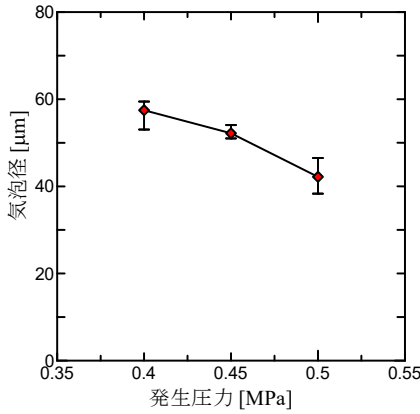


図1 気泡径と発生圧力の関係

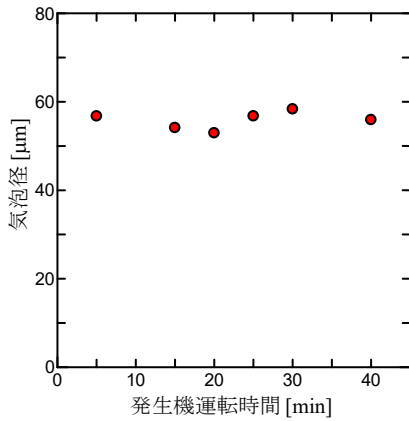


図2 気泡径と発生機運転時間の関係

加圧溶解方式で発生させたMB含有水中の空気は過飽和状態である。このMB含有水を静置すると、水中の溶解空気濃度は自由界面での放散により減少していき、時刻 t における、自由界面から距離 z にある溶解空気濃度 C_b は次式で表すことができる。

$$C_b = (C_{b0} - C_H) \operatorname{erf} \left(\frac{z}{\sqrt{4Dt}} \right) + C_H \quad (1)$$

ここで、 C_{b0} は初期空気濃度、 C_H は大気圧と平衡にある水中の空気飽和濃度、 D は水中の空気の拡散係数である。Young-Laplace の式とヘンリーの法則を用いると、溶存空気濃度と平衡にある気泡の直径 d_e は次式で表すことができる。

$$d_e = \frac{d_{e0}}{\operatorname{erf} \left(\frac{z}{\sqrt{4Dt}} \right)} \quad (2)$$

ここで、 d_{e0} は初期の溶存空気濃度に対し平衡にある気泡の直径である。 d_e より小さな気泡は、溶解平衡の圧力より気泡内の圧力が高いために気泡内の空気が周囲の水に溶解し、収縮する。一方、 d_e より大きな気泡は、溶解平衡の圧力より気泡内の圧力が低いために周囲の水から溶存空気が析出し、気泡は膨張する。気泡径 d の経時変化は、次式で表すことができる。

$$\frac{dd}{dt} = \frac{4\sigma DR_g T}{H \left(dp_{atm} + \frac{8\sigma}{3} \right)} \left(\frac{\operatorname{erf} \left(\frac{z}{\sqrt{4Dt}} \right)}{d_{e0}} - \frac{1}{d} \right) \quad (3)$$

ここで、 R_g は気体定数、 T は温度、 H はヘンリー一定数 [$\text{m}^3 \cdot \text{Pa} \cdot \text{mol}^{-1}$]、 p_{atm} は大気圧、 σ は水の表面張力である。

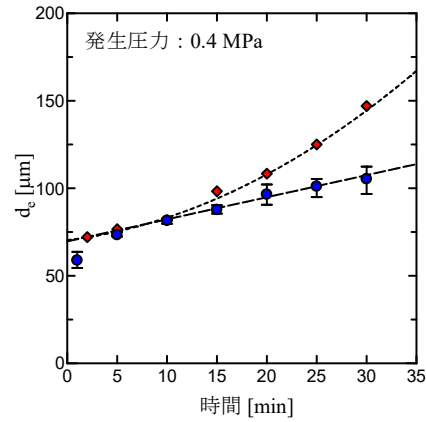


図3 溶存空気濃度と気泡径の経時変化

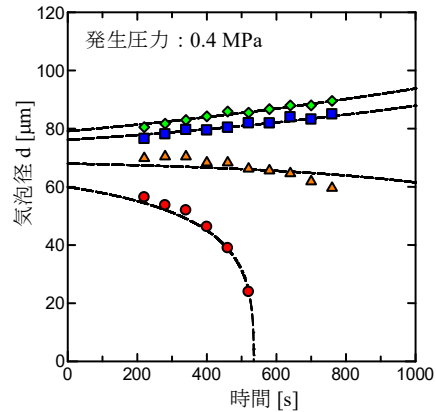


図4 気泡径の経時変化

図 3 の赤色◇は、加圧溶解方式で発生させた MB 含有水中の溶存酸素濃度の測定結果から求めた溶存空気濃度の経時変化を、その濃度に平衡な気泡径 d_e に変換して表した結果である。一方、同図の青色○は、MB 水を粒度分布測定機の石英セルに入れて測定した気泡のメジアン径である。青色○の 5 分以降のデータは、石英セルの壁に付着した気泡のみを反映している。両方のデータの時刻 0 における外挿値は良好に一致しており、時刻 0 における気泡のメジアン径を過飽和状態の溶存空気濃度の指標として用いることができる。透明な容器の壁に付着した気泡径の経時変化の一例を図 4 に示した。図中の破線は、(3)式による計算結果である。計算結果と実験結果は良好に一致した。種々の条件で比較した結果、気泡の体積に比べ十分な水の体積がある場合には、気泡の収縮・膨張挙動を(3)式により良好に記述できた。一方、気泡の収縮・膨張による溶存空気濃度の変化が無視できないほど水の体積が小さい系では、気泡の収縮・膨張速度は(3)式の結果より遅くなった。また、連結した気泡では、気泡径の変化速度は、孤立した気泡より速くなった。

血球計算板の測定空間内で複数個の PMMA 粒子が付着した気泡が収縮する際、PMMA 粒子は互いに接近し、気泡の消滅とともに凝集体を形成した。この凝集体の形成過程は非常に緩やかであり、 $30\mu\text{m}$ 程度の気泡の場合、凝集体に形成に 5 分程度の時間を要した。

(2) プリコート濾過におけるプリコート層調製時の MB 含有水の添加効果の調査とその効果の発現機構の解明

定速プリコート濾過では、濾過の進行に伴い濾過圧力（濾室圧力）が徐々に増加する。図 5 に水酸化鉄スラリーの珪藻土プリコート濾過を行った際の、濾過圧力が 90kPa に達するまでに捕捉された（単位濾材面積当たりの）水酸化鉄の量を濾過容量として示した。

横軸は、プリコート層調製時の水透過時間である。図中の破線は、MB 含有水を混合しない系での濾過容量であり、MB 含有水を用いることにより濾過容量が劇的に増加することが分かった。

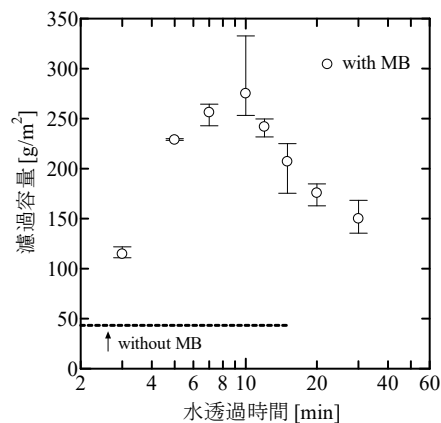


図 5 プリコート層の濾過容量

プリコート層調製時に水透過を行うと、プリコート層より気泡が離脱する現象が観察された。水透過に用いた水は、空気が過飽和で溶存している状態であり、これをプリコート層に導入することにより、プリコート層内の気泡が膨張し、気泡の離脱を促進するものと考えられる。気泡の離脱の際、層内部および表面に適度な凹凸が形成され、濾過容量の増加につながったものと推察される。プリコート濾過終了後のプリコート層表面には濾過ケーキが形成されていた。したがって、濾過終盤にはケーキ濾過機構が支配的であるものとする、濾過圧力 p と濾過時間 θ との関係は次式で表すことができる。

$$p = \frac{\mu\alpha_{av}\rho s}{1-ms} \left(\frac{Q}{A}\right)^2 \theta + \frac{\mu\alpha_{av}\rho s v_m}{1-ms} \frac{Q}{A} \quad (4)$$

ここで、 μ は濾液の粘度、 α_{av} はケーキ比抵抗、 m はケーキの湿乾質量比、 s は懸濁液中の固体質量分率、 Q は濾液流量、 A は濾過面積、 v_m は濾材抵抗である。濾過終盤における p 対 θ の傾きより、(4)式の θ の前の係数

$$\frac{\mu\alpha_{av}\rho s}{1-ms} \left(\frac{Q}{A}\right)^2 = \frac{dp}{d\theta} \quad (5)$$

を求めることができる。MB 含有水の添加の有無でケーキの構造が変わらないと仮定すると、

$$\left(\frac{A_{\text{withB}}}{A_{\text{withoutB}}}\right)^2 = \frac{\left(\frac{dp}{d\theta}\right)_{\text{withoutB}}}{\left(\frac{dp}{d\theta}\right)_{\text{withB}}} \quad (6)$$

となる。ここで、 A_{withB} 、 A_{withoutB} はそれぞれ MB 含有水を添加して調製したプリコート層の有効濾過面積と、添加しない系で濾過面積である。

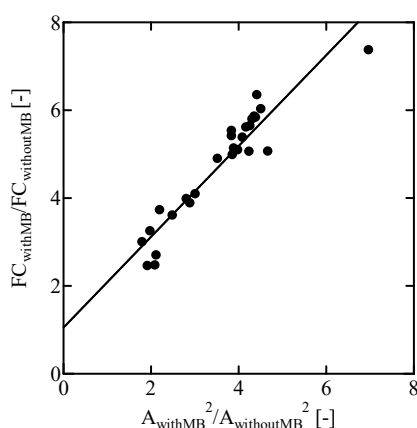


図 6 濾過容量と有効濾過面積の対応

図 6 に MB 含有水を添加した際の濾過容量 FC_{withB} と添加しない系での濾過容量 FC_{withoutB} の比を有効濾過面積の比に対しプロットした。濾過容量の比は、有効濾過面積の比と良好に相関しており、MB 含有水を混合して調製したプリコート層の濾過容量の増加は有効濾過面積の増加により説明が可能であることを示している。

以上のように、プリコート層調製時に水透過を行うと、プリコート層中の気泡が膨張・離脱することにより層の改質が進行する。このような MB 含有水の添加効果を得るためには、濾室の初期圧力を適切に設定する必要があることも明らかとなった。一方、プリコート層の改質は主に層表面近傍で進行するため、プリコート量にも最適値が存在した。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 3 件)

①宋彦舟, 柴田晃宏, 岩崎智宏, 岩田政司, 小栗秀一郎, 北川富則, 柳下幸一; 水中の空気ファインバブルの収縮・膨張挙動, 化学工学会第83年会 (2018年)

②柴田晃宏, 宋彦舟, 岩田政司, 小栗秀一郎, 北川富則, 柳下幸一; プリコートろ過におけるファインバブル添加によるプリコート層の改質, 化学工学会第49回秋季大会 (2017年)

③宋彦舟, 柴田晃弘, 岩田政司, 小栗秀一郎, 北川富則, 柳下幸一; 懸濁液中でのファインバブルの収縮・膨張挙動, 化学工学会第82年会 (2017年)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩田 政司 (IWATA, Masashi)

大阪府立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 1 0 1 5 1 7 4 7

(2) 研究分担者

田中 孝徳 (TANAKA, Takanori)

大阪電気通信大学・工学部・講師

研究者番号: 3 0 5 8 1 8 8 9

安田 昌弘 (YASUDA, Masahiro)

大阪府立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 4 0 2 6 4 8 0 8