

論文

液中分散気泡の統計的処理

—底吹き精錬炉の水モデル実験—

川上正博*・富本登**・伊藤公允*

Statistical Analysis of Gas Bubbles Dispersion in Liquid Phase

—Water Model Experiment on Bottom Blowing Processes—

Masahiro KAWAKAMI, Noboru TOMIMOTO, and Koin ITO

Synopsis:

Nitrogen gas was injected into water through a vertical nozzle which was placed at the bottom center of a cylindrical container. Bubbles dispersed in water were detected by electroresistivity probes. Time series data obtained were processed with a micro-computer and subjected to statistical analyses. It was shown that the bubble dispersion was a stochastic process and horizontal distribution of the bubble frequency was represented by a two dimensional Gaussian curve around the jet axis. Cone angle of the bubble dispersion zone was defined explicitly from the locus of threefold standard deviation of the distribution on a vertical plane through the jet axis. The cone angle varied noticeably with the geometry of water vessel which would affect the profile and velocity of the circulating flow in the bulk water. Local rising velocity of bubble was determined by taking cross correlation of two time series data which were obtained from two probes located close each other along the rising path. Size distribution of bubbles was determined locally by a new method which was originated from quantitative stereology. It was shown that the measurement of time series by the electroresistivity probes coupled with the statistical analyses was helpful to investigate the spread and structure of bubble dispersion zone in electrically conductive liquids.

1. 緒 言

近年、Q-BOP や AOD のように炉底の羽口より多量の反応性ガスを吹き込む製鋼法が発達してきた。これらのプロセスでは、反応はまず気-液分散相内で起こり、ついで、反応の終了した溶鋼が炉全体に混合拡散していくことにより進行すると考えられる。このような観点から、底吹き精錬炉内の反応を考える時、気-液分散相の形状や構造を知ることはきわめて有益であると考えられる。更に、取鍋内に不活性ガスを吹き込む場合にも、上記を知ることは重要であると考えられる。従来、液中に吹き込まれたガスからの気泡の生成機構や平均気泡径などに関する研究は比較的多く行われており、その概要は森と佐野¹⁾によりまとめられている。それによれば、単一気泡の挙動については、形状、大きさ、上昇速度、物質移動係数等が明らかにされている。また、気泡群については、気泡塔のように、直径/高さが小さな容器内を比較的均一に分散上昇していく場合につき、ガス流量を

容器断面積で割った空塔速度を用いて、ガスホールドアップ²⁾、物質移動係数³⁾、および容量係数²⁾が実験データをもとに整理されている。しかし、底吹き精錬炉や取鍋内では、多くの場合、径の大きな容器の中に比較的少数のノズルから多量のガスが吹き込まれ、気-液分散相は容器内に局在している。このような場合の気-液分散相の形状や構造については、近藤ら⁴⁾、DONALD and SINGER⁵⁾、THEMELIS, et al.⁶⁾、ORYALL and BRIMACOMBE⁷⁾らの研究がある。しかし、それらの実験条件は限られており、上記の形状や構造における、ガス流量、液体の種類、および、容器形状などの吹き込み条件の影響を広範囲にわたり明らかにするためには、なお多くの実験が必要と考えられる。

本研究では、多量のガスを吹き込んだとき、発生する気泡の数が莫大となることから、電気探針法により得られるランダムな電気信号に種々の統計的処理を行い、以下の諸量を求める、気-液分散相の形状と構造を調べることを目的とした。

昭和55年10月日本会講演大会、及び学振製鋼第19委第3分科会製鋼反応協議会にて発表

昭和56年4月16日受付 (Received Apr. 16, 1981)

* 豊橋技術科学大学 工博 (Toyohashi University of Technology, 1-1 Aza-Hibarigaoka Tempaku-cho Toyohashi 440)

** 豊橋技術科学大学大学院(現:(株)神戸製鋼所) (Graduate School, Toyohashi University of Technology, Now Kobe Steel, Ltd.)

ここに、 N_B は測定時間 t の間に測定された気泡通過数であり、そのほかの記号の意味は後に示す。

2. 実験方法

2·1 装置与操作

本実験では測定手段の確立を第一に考え、液体としては実験の容易な水を用いた。Fig. 1 に用いた水槽の概略図を示す。容器は $804 \times 804 \times 1000$ mm の透明アクリル製である。その中に内径 800 mm ϕ の透明アクリル製円筒を入れた。また、容器径を変える場合には、更にこの内側に内径 400 mm ϕ の同心円筒を入れた。底部中心には、内径 3 mm ϕ の銅製ノズルをとりつけた。水槽の上端には、アルミニウム製の L アングルを渡した。一方の探針をそれに固定し、他方の探針は、L アングル上をスライドする支持台にとりつけて移動させた。探針は 1.5 mm ϕ の銅線で、その先端を約 0.5 mm ϕ にけずり、先端面を残し、ラッカ塗料で被覆した。また、浴の振動による先端位置のぶれを小さくするため、先端から 80 mm を残し、その上部は 12 mm ϕ のステンレス管の中

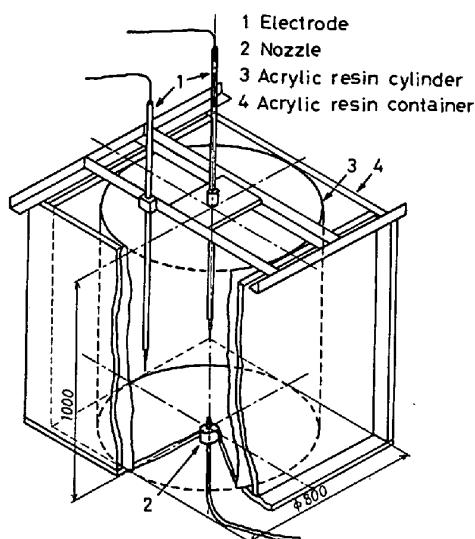


Fig. 1. Schematic diagram of water vessel.

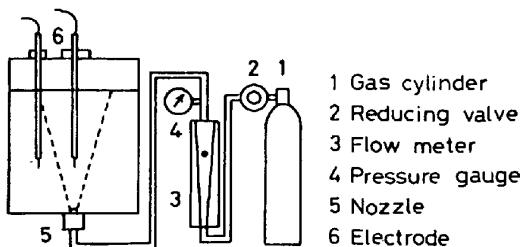


Fig. 2. Schematic diagram of gas blowing system.

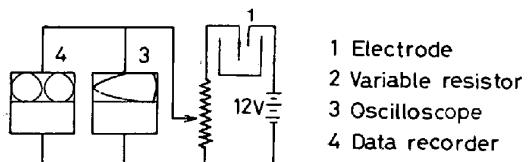


Fig. 3. Schematic diagram of electrical circuit and recording system.

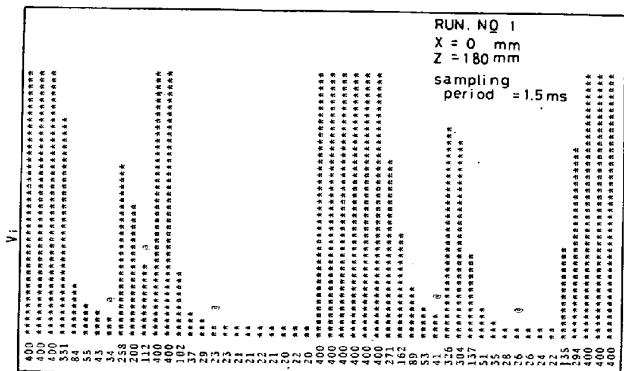


Fig. 4. An example of the time series data after A/D conversion.

に入れて固定した。吹き込んだガスは市販の窒素ガスで、その流量は後の実験計画表に示すとおりである。ガス吹き込み系列の概略は、Fig. 2 に示した。通電、および測定回路は Fig. 3 に示した。電源には 12V の直流電圧発生器を用い、探針、および可変抵抗を結んで閉回路を作った。可変抵抗のある 2 点間の電位差の変化をアナログデータレコーダーで記録した。同時に、その信号はモニター用のオシロスコープで観察し、導通時の信号が 1 V となるよう、可変抵抗を調節した。なお、水は水道水を用いたが、導電性をよくするために、KCl を約 0.1% 程度添加した。

2.2 元-夕护理方法

(1) 気泡通過の判定

アナログデータはサンプリング間隔 $500\ \mu\text{s}$ でデジタル化し、マイクロコンピュータのデータファイルに記憶させた。デジタル化されたデータの一例を Fig. 4 に示す。ここで、 V_i が 400 のレベルにあるとき探針は液中にあり、20 台のとき、気泡中にあることを示す。ま

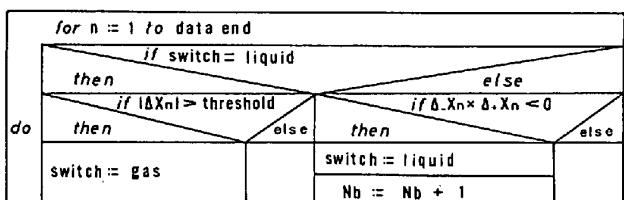


Fig. 5. N. S. Chart for the computation of bubble frequency.

た, Fig. 4 の書き出しが記憶されたデータの3個ごとに行つてるので, 各データ間隔は 1.5 ms である. 気泡頻度を求めるに当たつては, これらのデータ V_i の一階差分 ($V_i - V_{i-1}$) をとり, その値が V_i の最大値の 10% 以上となり, その後, $(V_i - V_{i-1}) \times (V_{i+1} - V_i) \leq 0$ となるところで一つの気泡と判定した. 図上の④マークのついた所で気泡カウントを行つたことを示す. 信号が矩形波でない場合や, 気泡と気泡の間隔が短く, 信号の高周波成分がサンプリング間隔の 2 倍より短い場合には, A/D 変換時のエイリアシング⁸⁾により, 探針が液中に入つても V_i が最大値まで立ち上がらない. そのような場合にも, この方法により, 精度よく気泡をカウントすることができた. 以上のデータ処理のアルゴリズムを Fig. 5 に示す. なお, ガスホールドアップや気泡径分布を求めるには, 上記の方法はとらず, V_i が最大値の 1/2 以下の値となつたところで気泡が通過したと判定した. したがつて, 気泡の通過時間 t_B は V_i が最大値の 1/2 以下になつた時点から, 1/2 以上に上がるまでの時間で求めた. この方法による気泡数は Fig. 5 の方法によるものより約 15% 程度少なめに見積られたが, 処理時間の制約上, この簡便法を採用した.

(2) 気泡上昇速度の求め方

気泡の上昇方向に沿つて上下 2 本の探針を置き, 気泡通過時間のずれ τ で探針間の距離 l を割れば, 探針間の平均上昇速度 V_B を求めることができる. 本実験では, この τ を求めるのに, 以下に示す相互相関技術⁹⁾を用いた. 一つの探針より得られる時刻歴を $x(t)$, もう一方を $y(t)$ とすれば, 相互相関関数 $R_{xy}(\tau)$ は(5)式で与えられる.

$$R_{xy}(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x(t+\tau) y(t) dt \quad (5)$$

ここで, $x(t)$ と $y(t)$ の時間的ずれは $R_{xy}(\tau)$ を最大とする τ として求められる. 本実験では, データはディジタル化されていて, $x(t)$, $y(t)$ は離散的な値をとつてゐるので, 約 3000 のデータより次式によつて $R_{xy}(\tau)$ を計算した.

$$R_{xy}(\tau) = \sum_{i=1}^{3000} x(t_i + \tau) y(t_i) \Delta t / \sum \Delta t \quad (6)$$

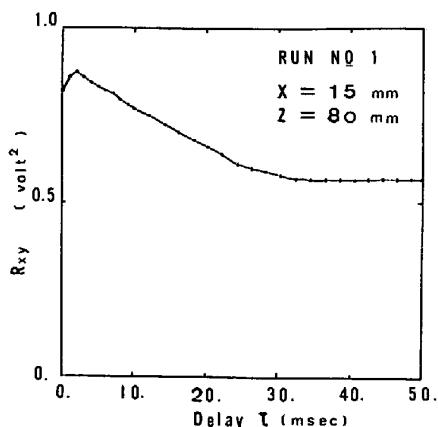


Fig. 6. An example of cross-correlation function calculated using equation (6).

探針間隔を 3.6 mm として測定した $R_{xy}(\tau)$ の計算結果の一例を Fig. 6 に示す.

(3) 気泡径分布の求め方

金属組織学の分野において, 球形析出物(たとえば, 球状黒鉛鉄中の析出黒鉛)の粒度分布を, 組織写真上に任意の一本の走査直線を引き, その直線と球状析出物断面との切片の長さ分布より求める式が提出されている. 本実験において, 探針と上昇気泡の相対的位置関係を考えれば, 気泡を球状と仮定した場合, その式が適用できると考えられる. 本実験では, 種々ある解析法のうち, SPEKTOR¹⁰⁾ の方法を用いた.

走査線上の切片の長さ分布を求め, 全切片長の範囲を k 等分して, その間隔を Δ とする. 直径が $j\Delta \pm \Delta/2$ の範囲にある気泡の単位体積中の個数 $(N_V)_j$ は, 切片長が $j\Delta \pm \Delta/2$ と, $(j+1)\Delta \pm \Delta/2$ にある切片の個数 $(n_L)_j$, $(n_L)_{j+1}$ を用いて, 次式で与えられる.

$$(N_V)_j = \frac{4}{\pi \Delta^2} \left[\frac{(n_L)_j}{2j-1} - \frac{(n_L)_{j+1}}{2j+1} \right] \quad (7)$$

この $(N_V)_j$ の分布を百分率になおすと, (4)式となる.

$$P_j = \frac{(N_V)_j}{\sum_{j=1}^k (N_V)_j} \times 100 \quad (4)$$

なお, 切片長は, (2)で求めた気泡上昇速度 V_B と, それに用いたデータより求めた気泡通過時間 t_B の積で求めた. データ変換以後, P_j を求めるまでのアルゴリズムを Fig. 7 に示す. (7)式の導出は Appendix に示す.

2・3 実験条件の設定

予備実験の結果より, 気-液分散相の拡がりは多くの吹き込み条件により変化することがわかつた. 本実験では, いろいろな要因の気-液分散相の拡がり角(コーンアングル, 後に定義する)におよぼす効果を定性的に知るために, 直交表を用いた実験計画法¹¹⁾により実験条件の

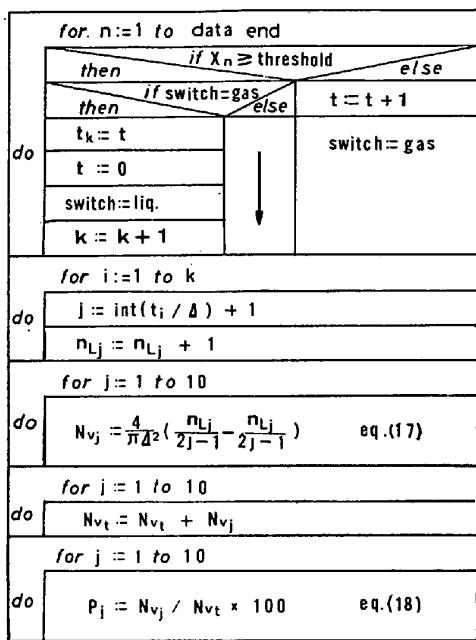


Fig. 7. N. S. chart for computing the distribution of bubble diameter.

Table 1. Allocation of experimental conditions according to orthogonal array $\frac{1}{2}H_7$.

| Run No. | Factors | | | | | | | Random number | Experimental order |
|---------|---------|---|---|---|---|---|---|---------------|--------------------|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | | |
| 1 | + | + | + | + | + | + | + | 48 | 4 |
| 2 | + | + | - | - | + | - | - | 73 | 1 |
| 3 | + | - | + | - | - | + | - | 45 | 5 |
| 4 | + | - | - | + | - | - | + | 59 | 3 |
| 5 | - | - | - | - | + | + | + | 4 | 8 |
| 6 | - | - | + | + | + | - | - | 31 | 6 |
| 7 | - | + | - | + | - | + | - | 70 | 2 |
| 8 | - | + | + | - | - | - | + | 50 | 7 |

Allocation of factors :

1.....Bath depth H 2.....Bath radius R 3.....Gas flow rate Q 4.....Error 5.....Cross effect of H and R 6.....Cross effect of H and Q 7.....Cross effect of R and Q

Experimental conditions :

Bath depth H+ = 600 mm, H- = 400 mm Bath radius R+ = 400 mm, R- = 200 mm Gas flow rate Q+ = 40 l/min, Q- = 20 l/min Nozzle diameter N_d = 3.0 mm

設定を行つた。考える要因としては、浴の深さ、半径、およびガス流量の三つを選び、それぞれ二水準を設定して、8回の実験を行つた。そしてコーンアングルの平均値を求め、それぞれの効果を、その平均値を上、下させる効果として評価した。Table 1 に $\frac{1}{2}H_7$ (いわゆる L₈ に相当) の直交表と、各要因の割りつけを示す。各要因の水準は、浴深さは 600 mm と 400 mm、半径は 400 mm と 200 mm、ガス流量は 40 Nl/min と 20 Nl/min で、それぞれ大きい方の値のとき+、小さな値のとき-の符号で表中に示した。各要因の割りつけは表の下に示すとおりである。また、表中の Random number とあるのは、実験順序を決めるために、擬似乱数を発生させ

た結果で、この値の大きい順に実験を行つた。なお、ガスホールドアップ、気泡上昇速度、および気泡径分布の測定は、Run No. 1 についてのみ行つた。

3. 実験結果

3.1 定常性の検定

多数の上昇気泡が探針を通過するという現象は不規則過程（または確率過程）と考えられる。その場合、測定された一本の時刻歴から、その現象の普遍的性質を引き出すためには、その不規則過程がエルゴード的[†]でなければならない。そのためには、まず、定常性の検定を行う必要がある。定常性の定義は、N 個の時刻歴 $x_k(t)$ について、以下に示す平均値 $\mu_x(t_1)$ 、および自己相関関数 $R_x(t_1, t_1+\tau)$ が時刻 t_1 に対して不変であるということである¹²⁾。

$$\mu_x(t_1) = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N x_k(t_1) \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

$$R_x(t_1, t_1+\tau) = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N x_k(t_1)x_k(t_1+\tau) \quad \dots \dots \dots \quad (8')$$

しかし、この定義による検定は、事実上、実行不可能であるので、より簡便な連の検定¹²⁾により、定常性の検定を行つた。

ある時刻歴を 16 の時間帯に分割し、その各区間内で測定された気泡の数を求める。その平均値を求めて、各区間内の気泡数が平均値を上まわる場合、その区間を⊕の区間とし、下まわる場合には⊖の区間とする。そこで、同符号の区間が続いているとき、それをまとめて一つの連とする。連の分布表によれば、区間数 16 に対して、連の数が 4 から 13 の間にあれば、信頼度 95% で定常であるとされている。実際に、一本の測定された時刻歴に対して、連の数を求めたところ 11 であつたので、この不規則過程は信頼度 95% で定常であることが確かめられた。

一般に、定常不規則過程はエルゴード的であると言われているので、エルゴード性の検定は省略した。以上より、本実験では、一本の時刻歴をもつて、その不規則過程の性質を代表させることができるとみなした。

3.2 気泡頻度分布

(1) ガウス分布の検定

[†] エルゴード性とは、時刻歴を何本かとつた場合、それぞれの一本についての平均値と自己相関関数が、時刻歴によらず一定であるということである¹²⁾。

$$\mu_x(k) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x_k(t) dt \quad : \text{平均値}$$

$$R_x(\tau, k) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x_k(t)x_k(t+\tau) dt \quad : \text{自己相関関数}$$

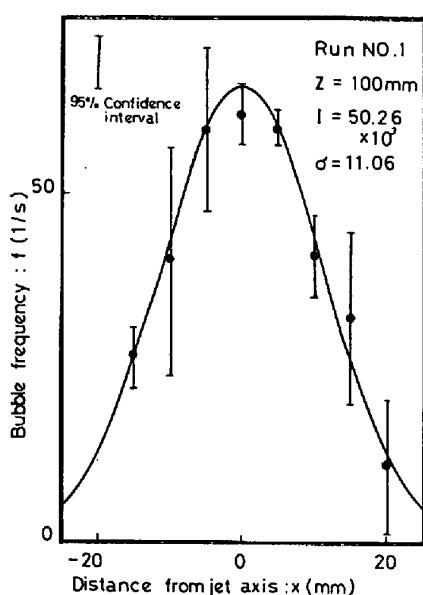


Fig. 8. An example of radial distribution of bubble frequency and Gaussian curve fitting the data.

Fig. 8 に Run No. 1 の条件で、ノズル上方 100 mm の位置における水平方向の気泡頻度分布を示す。各点において、20~50 s の長さの時刻歴を約 10 本とり、その平均値を黒丸で示した。また、測定誤差がガウスの誤差分布に従うと仮定して、95% の信頼区間を線分 I で示した。

気泡の液中への分散は確率過程の一つと考えられるので、水平方向への気泡到達頻度は吹き込み軸のまわりの 2 次元ガウス分布に従うと仮定する。その場合、確率密度関数 $P(x_1, x_2)$ は次式で与えられる。

$$P(x_1, x_2) = \frac{1}{2\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{x_1^2 + x_2^2}{2\sigma^2}\right) \quad \dots \dots \dots (9)$$

ここに、 x_1, x_2 は任意の高さの水平面上での互いに直交する座標を示す。Fig. 8 に示す実験では、中心を通る一本の直線上で測定がされているので、その直線を x_1 軸と考えれば、(9)式で、 $x_2=0$ とおいて、

$$P(x_1, 0) = \frac{1}{2\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{x_1^2}{2\sigma^2}\right) \quad \dots \dots \dots (10)$$

測定された気泡頻度を $f(x_1)$ とすれば、その推定式 $\hat{f}(x_1)$ は、

$$\hat{f}(x_1) = \frac{I}{2\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{x_1^2}{2\sigma^2}\right) \quad \dots \dots \dots (11)$$

ただし、

$$I = \int_0^\infty 2\pi x_1 f(x_1) dx \quad \dots \dots \dots (12)$$

測定値を最小自乗法により (11) 式に適合させたのが、図中の実線であり、 $I = 5.03 \times 10^4$, $\sigma = 11.1$ と求められた。この実線を期待度数として、各測定点について χ^2

検定を行い、信頼度 95% で (11) 式が成り立つことを確かめた。すなわち、気泡の分散は確率過程であつて、その水平方向への到達頻度は吹き込み軸を中心とする 2 次元ガウス分布で表されることが確かめられた。

(2) コーンアングルの決定

気泡頻度分布がガウス分布に従うとき、気-液分散相の拡がりを標準偏差 σ の 3 倍で定義すれば、全気泡数の 99.7% はこの内側に入る。Fig. 9 にノズルからの垂直距離を種々にとったときの水平方向の気泡頻度分布を示す。実線はおのおのの測定値を最小自乗法によりあてはめたガウス分布曲線である。その際に求められた σ の値より、 3σ をノズルからの垂直距離に対してプロットしたのが Fig. 10 である。この図より、 3σ は 200 mm まではほぼ直線的に増加するので、その直線の垂線に対する

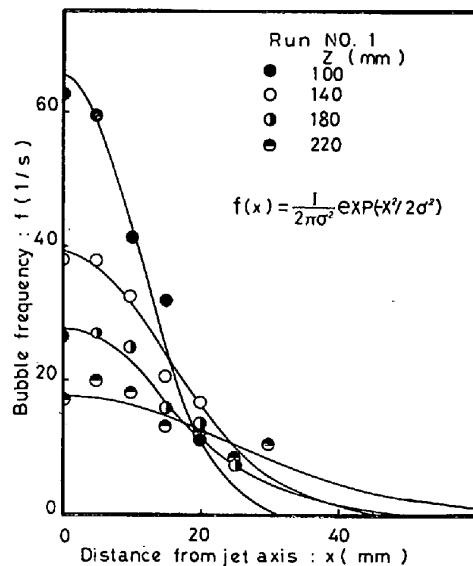


Fig. 9. Radial distribution of bubble frequency at different height from nozzle tip.

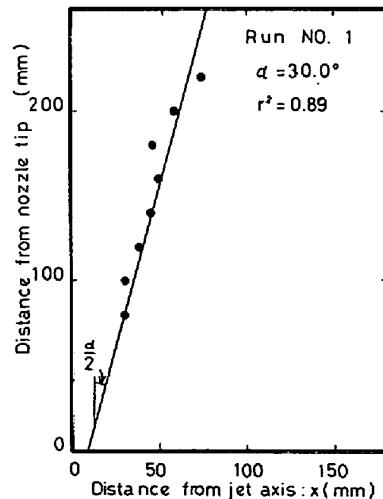


Fig. 10. The locus of threefold standard deviation and definition of the cone angle α .

Table 2. Experimental results for cone angle obtained under conditions shown in table 1.

| Run no. | α | mean value : $\bar{\alpha} = 26.8$ |
|---------|----------|------------------------------------|
| 1 | 30.0 | effects : 1 = -0.2 --- [H] |
| 2 | 24.6 | 2 = -0.8 --- [R] |
| 3 | 27.6 | 3 = 1.2 --- [Q] |
| 4 | 23.6 | 4 = 0.4 --- error |
| 5 | 29.0 | 5 = 1.6 --- [HXR] |
| 6 | 29.8 | 6 = 1.2 --- [HXQ] |
| 7 | 24.8 | 7 = 0.0 --- [RXQ] |
| 8 | 24.2 | |

Table 3. Table for variance analysis.

| Factor | Sample variance | Freedom | Population variance | F |
|--------|-----------------|---------|---------------------|---------|
| R | 2.5r | 1 | 2.56 | 10.38* |
| Q | 5.76 | 1 | 5.76 | 23.35* |
| HXR | 10.96 | 1 | 10.90 | 44.15** |
| HXQ | 5.30 | 1 | 5.30 | 21.65* |
| Error | 0.74 | 3 | 0.246 | 1.0 |
| | 25.24 | 7 | | |

* $F >_3 F_{95} = 10.1$ ** $F >_3 F_{99} = 34.1$

る傾角の2倍を α （コーンアングル）とし、それをもつて気-液分散相の拡がりを評価する。

(3) コーンアングルの吹き込み条件依存性

上記のコーンアングルを、Table 1 に示される条件下に求めて、まとめたのが Table 2 である。それらに対応する分散分析表を Table 3 に示す。そのF欄にはF分布値を示した。信頼度95%および99%のF分布値は、それぞれ10.1と34.1である。この表で見れば、半径とガス流量は、それぞれ単独で、信頼度95%で有意な効果がある。浴深さと半径の相互効果は99%，また、浴深さとガス流量の相互効果は95%の信頼度で認められた。

これをより細かく見ると、Table 2において、半径の単独効果は-0.8であり、これは半径が大きい程コーンアングルは小さくなることを意味する。同様に、ガス流量が大きくなれば、コーンアングルは大きくなる。浴深さと半径の相互効果はプラスで最大値をとつており、浴深さと半径が共に大きいか、共に小さい場合に、コーンアングルは大きくなる。更に、この相互効果がすべての要因の中で最大である。浴深さとガス流量の相互効果は、その程度はあまり大きくないが、上と同様の傾向を示す。

3.3 ガスホールドアップ

ガスホールドアップの測定結果の一例を Fig. 11 に

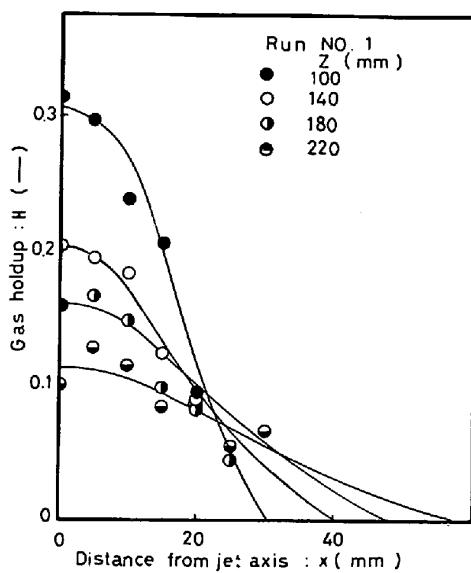


Fig. 11. Radial distribution of local gas hold-up.

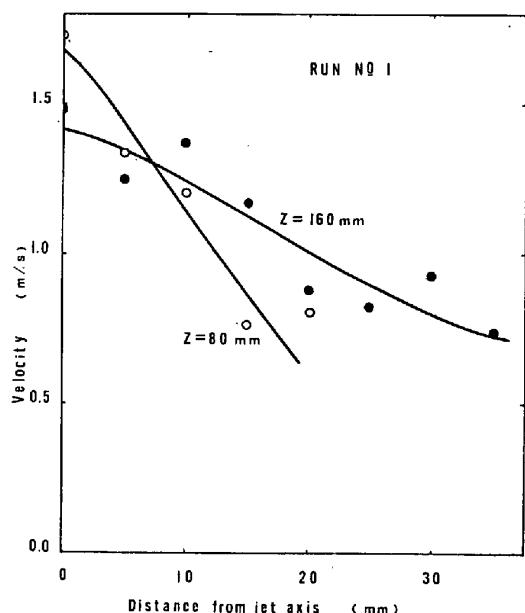


Fig. 12. Radial distribution of rising velocity of bubbles at 80 and 160 mm above the nozzle tip.

示す。図中の実線は各測定点を通るように滑らかに引いたものである。その形はFig. 8に示されるガウス分布曲線と似ている。しかし、ガスホールドアップの定義から考えて、この曲線に物理的意味を賦与することはむずかしい。なお、精錬反応の場所として気-液界面を考える場合には、ガスホールドアップが大きく、かつ、気泡頻度の大きい状態が望ましい。そのような観点から、ガスホールドアップの測定は有意義であると考えられる。

3.4 気泡上昇速度

Run No. 1 の条件下における気泡上昇速度の測定結果を Fig. 12 に示す。a), b) はそれぞれノズルから

80, 160 mm の高さにおける半径方向の速度分布である。80 mm の位置では、中心で 1.74 m/s と最大値を示し、中心から離れるに従つて急激に減少する。160 mm の高さでも、ほぼ同様の傾向を示すが、曲線はよりなだらかになっている。特に中心では、1.48 m/s と 80 mm の高さより小さく、気泡が減速されたことを示している。

3・5 気泡径分布

Fig. 13 に、Run No. 1 の条件下に、ノズル直上 80 mm の高さで求めた気泡半径分布を示す。約 80% の気泡は、直径が 4.5 mm 以下であり、最大で 32 mm 程度の直径の気泡もわずかに検出された。気泡径の各区間の中間値を \bar{D}_j とし、

$$D_{\text{mean}}^L = \sum \bar{D}_j P_j / 100 \quad \dots \dots \dots \quad (13)$$

より、気泡径の平均値を求めると 3.3 mm となつた。

4. 考察

4・1 コーンアングルの測定および解析方法の比較

コーンアングルを求める方法としては、(1) DONALD and SINGER⁵⁾ や THEMELIS, et al.⁶⁾ による、長時間露出により気-液分散相の陰影を撮影して求める方法と、(2) ORYALL and BRIMACOMBE⁷⁾ による電気探針法により、ガスホールドアップが 1% となる所、あるいは、気泡頻度が $1s^{-1}$ となる所の輪郭から求める方法とが報告されている。(1)の方法では、撮影条件や写真上での気-液分散相境界の評価に任意性が入ると考えられる。また、(2)の方法では、循環流に巻き込まれてバルク中を廻っている気泡も測定する可能性がある。一方、ガスホールドアップの測定を、例えば、10% の所まで行い、その分布曲線から外挿するには、その分布曲線に明確な関数形

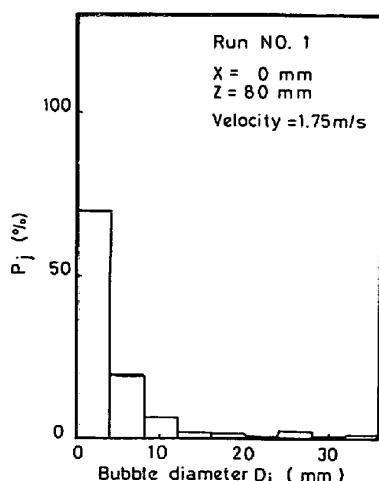


Fig. 13. Fractional histogram of bubble diameter at 80 mm above the nozzle tip by equation (4).

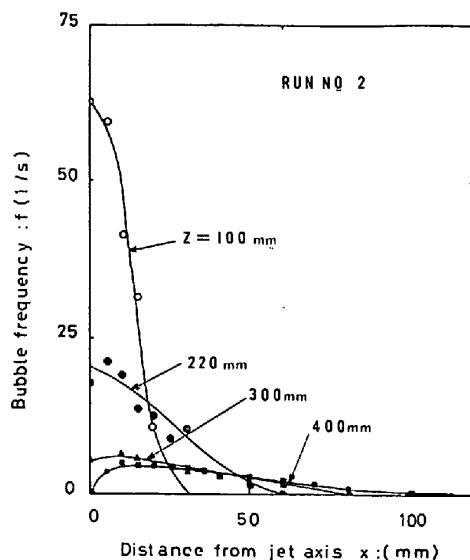


Fig. 14. Radial distribution of bubble frequency at positions up from nozzle tip showing non-Gaussian distribution.

を与えないため、任意性の入る可能性が大きい。

本実験の方法および解析では、頻度分布曲線を統計学に基づいて決定しているので、明らかな根拠のある数値を用いてコーンアングルを決定できた。更に、頻度分布曲線の決定に際しての誤差も定量的に評価できた。なお、 3σ を以ての定義は、99.7% の気泡を含む境界であるから、他の方法⁶⁾に較べ、多少大きなコーンアングルを与えると考えられる。一方、測定位置が 200 mm 以上では、Fig. 14 に示すように、気泡頻度はガウス分布に従わなかつた。これは、肉眼観察によれば、気-液分散相が上から見て反時計廻りで約 3 min の周期をもつて旋回することによることがわかつた。また、60 mm 以下の位置では、気泡頻度が多くて、用いたレコーダーの性能上、測定が行えなかつた。このように、ガウス分布が得られない場合には、本解析法は適用できず、本実験では、ノズル上方、60~200 mm の範囲についてのみ本解析法を適用した。

4・2 気泡上昇速度

相互相関技術による気泡上昇速度測定の誤差要因として、(1)本質的に、液中の気泡上昇速度はスペクトルを持つ¹⁸⁾、(2)探針間距離が 9.25 mm と大きすぎて、両探針上の気泡通過が相似でない、の二つが考えられる。(1)を考慮すれば、厳密に原理的には、相互相関技術は使えないことになるが、そのスペクトルの幅があまり広くななければ、その平均的な値は求めることができる。(2)について検討するために、間隔を 3.6 mm として測定を行つた。しかし、データの A/D 変換のサンプリング間隔 500 μ s が長すぎて、相互相関関数にピークの現

れることもしばしばあつた。したがつて、より精度を上げるためにには、サンプリング間隔の短い A/D 変換器が必要と考えられる。

近藤ら⁴⁾は、10 mmφ のノズルより、1500 Nl/min で空気を吹き込んだときの気泡上昇速度を同じく相互関技術で求めており、ノズル直上 100 mm の所で最大 6.5 m/s の値を報告している。この場所ではガスホールドアップは 0.9 以上であつた。一方、本実験では、それは 0.3 であつた。したがつて、気泡上昇速度はガスホールドアップによつても変化すると考えられる。

4・3 気泡径分布

従来、気泡径に関しては、ノズル出口での発生頻度^{13)~16)}やノズル上ある高さにおける通過頻度の総和¹⁶⁾¹⁷⁾でガス流量を割つて得られる体積平均相当気泡径のみが報告されている。本実験で導入された方法は、任意の位置での局所的な気泡径の分布を与える点に特徴がある。

この分布を求めるにあたつて用いた(7)式は、データ数が非常に多い場合に厳密に成り立つ式である。しかし、組織写真上の析出物の解析では、約 100 個のデータで信頼できる分布が得られるとしている¹⁰⁾。本実験では約 500 個のデータを用いて解析しているので、この点に関しては問題ないと考えられる。ただし、気泡をすべて球と仮定している点と、気泡上昇速度の測定精度に誤差要因がある。

(13)式で得られた気泡径の平均値は 3.3 mm であつたが、

$$D_{\text{mean}}^v = \sqrt[3]{\sum D_j^3 P_j / 100} \dots \dots \dots \quad (14)$$

より体積平均気泡径を求めたところ、約 7.4 mm となつた。LEIBSON ら¹³⁾は、200 mmφ の容器内でノズルの上 600 mm で、本実験と同じノズルレイノズル数の場合、体積平均気泡径として、3.0~5.1 mm の値を報告している。本実験では、ノズル直上 80 mm の所(気-液分散相の拡がり 50 mmφ) の測定で 7.4 mm となつており、液-液分散相が拡がるにしたがい、気泡は分裂する傾向を示すと考えられる。

4・4 気-液分散相内の気泡の挙動

気泡は浮力によつて垂直上向きの力を受けて上昇する。そのとき気泡のまわりを流れる液体の流線は、気泡同士が接近していく(一個の気泡のまわりに速度境界層を仮定した場合、隣り合う気泡の境界層同士が重なりあう程度に)集団をなすときは、その集団の外側に沿うと考えられる。この場合、ベルヌーイの定理により、集団内の圧力は外側より大となり、各気泡は外側から集団を離れて水平方向に分散して行く。分散が完了して各気泡がそのまわりに独自の流線を持つようになると、平行し

て上昇する二つの気泡には逆に引力が働き接近する。しかし、再び接近しすぎると上記の理由により反発し合う。以上のように気泡は分散完了後は、離合集散を繰り返しながら上昇すると考えられる。また、気泡の上昇速度が大きい場合、気泡の下に後流が形成され、そこに、隣りの気泡が吸い寄せられる。更に、気泡が橢円形の場合には、一つの気泡だけととつても、ら線形を描いて上昇する。

以上、単一気泡の挙動、および、複数気泡の相互作用による気泡の水平方向の変位要因を考えたが、実際の気泡群内では気泡数が莫大であり、また、その径や上昇速度に分布を持つるので、個々の気泡の水平方向の変位はランダム化される。このために気泡頻度分布は二次元ガウス分布に従うと考えられる。

4・5 気-液分散相の拡がり

気泡は上昇するとき、まわりの液体を上向きに加速するので、気-液分散相が上拡がりとなるには、そのまわりから、液の流入が必要となる。気泡はこの流れに乗るので、コーンアングルはこの流れの流量および方向によつて変化すると考えられる。この流れは容器内の循環流の一部であつて、水平、垂直の速度成分を持つ。水平成分は内向き、垂直成分は上向きの方向を持つ。気-液分散相の境界において、水平方向の速度成分が大きい程、分散相の拡がりは小さくなる。最近、森、佐野¹⁹⁾や浅井ら²⁰⁾は、循環流の流量や速度についてモデルを発表しているが、それらを用いて本実験結果を説明することはできなかつた。それは、(1)投入エネルギーが循環流の運動エネルギーに比例すると仮定し、浴形状の違いによる流動の摩擦エネルギー損失の差を考慮していない、(2)循環流量や代表速度というスカラー量からは気-液分散相境界における水平方向速度成分の大小が考えられない、のいずれかに帰因すると考えられる。詳しくは循環流に関する測定や解析に待たねばならないが、本実験結果によれば、深さと半径の比が 1:1、および、3:1 の場合には、上記水平方向の速度成分が大きくなり、コーンアングルは小さくなつたと考えられる。

4・6 精錬炉への本研究結果の応用

本研究は水モデル実験ではあるが、得られた結果は、気泡がいつたん液相内に分散した後は、その挙動が確率過程であることを示している。このことは精錬炉内でも正しいと考えられるので、コーンアングル、気泡径や上昇速度の絶対値は別として、気-液分散相の拡がりによつて浴形状の影響などについては、定性的に本実験結果を応用できると考えられる。

吹き込まれたガスによつて精錬を行う炉においては、

(1)反応は気-液分散相で進行し、(2)反応の終了した液体が循環流にのつて炉内に混合拡散する、ことによつて精錬が進行する。(2)の過程に関しては、均一混合時間と拌攪動力の関係という形で多くの研究が発表されている¹⁹⁾²⁰⁾ので、ここでは、(1)の過程を促進するといふ観点から考察を行う。この観点に立てば、気-液分散相の拡がりは大きい方が望ましい。本実験によれば、浴の深さと半径の比を制御することにより、この拡がりを制御することができると考えられる。本実験条件下では、深さ/半径は3または1の場合に、分散相は狭く、2および1.5の場合に広い。

一方、多数のノズルを用いた場合には、單一ノズルの場合の数倍、分散相は広くなる。また、ノズル1本当に1のガス流量は減少する。本実験結果では、近藤らの報告⁴⁾と比較して、気泡上昇速度は小さいので、ガス流量が減少すれば、気泡滞留時間が伸び、反応効率の高くなることが期待できる。Q-BOPでは、約20本ものノズルを使用しており²¹⁾、以上の気-液分散相内の反応といふ観点からも優れた特性を持つていると考えられる。

5. 結 言

電気探針法により水中に分散する気泡を検出し、種々の統計的方法によりデータを解析し、以下のことを明らかにした。

1. 気-液分散相内の気泡通過は確率過程であつて、その水平方向の拡がりは二次元ガウス分布に従う。
2. その標準偏差の3倍の3σで定義される気-液分散相の拡がり角は平均で26.8°であり、浴の深さと半径との間の関係に大きく影響される。
3. 相互相關技術により気泡の上昇速度が測定可能であることがわかつた。
4. 時系列データ計量形態学の方法を適用することにより、分散気泡径の分布を求めることができた。

以上、気-液分散相の形状と構造調べるのに、電気探針法より得られるデータを統計処理する方法はきわめて有望であることが示された。現在、この方法を溶鉄に適用し、その中の気泡分散に関する実験を進めている。

最後に、実験遂行にあたり、多大の協力をいただいた柳沢清春氏に感謝の意を表します。

Appendix : (7) 式の導出

Fig. 15に示すように直径Dの球形気泡がTest lineに沿つて通過し、その切片の長さがLだつたとする。この球の中心から切片までの距離をAとすれば、

$$A = [(D/2)^2 - (L/2)^2]^{1/2} \quad \dots \dots \dots (15)$$

ここで、Test lineを中心軸として半径Aで単位長さの

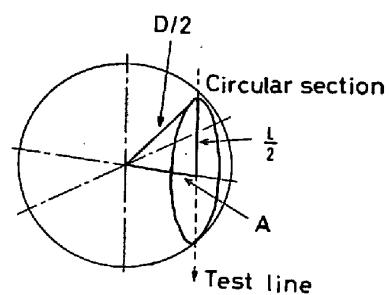


Fig. 15. Geometrical relation between the probe position and a rising bubble.

円筒を考えると、この円筒内に中心を置き、直径Dの球形気泡は、Test lineとL~Dの間の長さの切片を持つ。したがつて、長さがL~Dの間にある切片の単位長さ当たりに測定される個数を $(n_L)_L^D$ とすれば、単位体積中の直径Dの球の個数 N_V との間には次のような関係が成り立つ。

$$(n_L)_L^D = \pi A^2 N_V = \frac{\pi}{4} (D^2 - L^2) N_V \quad \dots \dots \dots (16)$$

実際には、直径が D_1, D_2, D_i, D_{\max} の気泡が存在している。それらの直径を有する気泡の単位体積中の個数を $(N_V), (N_V)_2, \dots, (N_V)_j, \dots, (N_V)_{\max}$ とすれば、長さがL~ D_{\max} の間にある切片の単位長さ当たり測定される個数 $(n_L)_L^{D_{\max}}$ は次式で与えられる。

$$(n_L)_L^{D_{\max}} = \sum_{D_j=L}^{D_{\max}} \frac{\pi}{4} (D_j^2 - L^2) (N_V)_j \\ = \frac{1}{4} \sum_{D_j=L}^{D_{\max}} \pi D_j^2 (N_V)_j - \frac{\pi L^2}{4} \sum_{D_j=L}^{D_{\max}} (N_V)_j \dots \dots \dots (17)$$

直径がL~ D_{\max} の間にある球について、単位体積中にあるものの表面積の総和 $(S_V)_L^{D_{\max}}$ と、総数 $(N_V)_L^{D_{\max}}$ を用いれば、

$$(n_L)_L^{D_{\max}} = \frac{1}{4} (S_V)_L^{D_{\max}} - \frac{\pi L^2}{4} (N_V)_L^{D_{\max}} \dots \dots \dots (18)$$

L の変動に対し、(18)式の全微分をとれば、

$$d(n_L)_L^{D_{\max}} = \frac{1}{4} d(S_V)_L^{D_{\max}} - \frac{\pi L^2}{4} d(N_V)_L^{D_{\max}}$$

$$- \frac{\pi}{2} (N_V)_L^{D_{\max}} L dL \quad \dots \dots \dots (19)$$

ここで、 $d(S_V)_L^{D_{\max}} = \pi L^2 d(N_V)_L^{D_{\max}}$ であるから(19)式は、

$$d(N_V)_L^{D_{\max}} = - \frac{\pi}{2} (N_V)_L^{D_{\max}} L dL \quad \dots \dots \dots (20)$$

更に、 $d(n_L)_L^{D_{\max}} = - d(N_V)_L^{D_{\max}}$ であることを考えると、

ここに、 $(n_L)^b$ は長さが 0 から L の間にある切片の単位長さ当たりの数である。 (21) 式を書きなおすと、

$$(N_V)_L^{D_{\max}} = \frac{2}{\pi} \frac{1}{L} \frac{d(n_L)_0^L}{dL} \dots \dots \dots \quad (22)$$

(22)式を L についての有限差分 Δ を用いて書きなおすと、

$$(N_V)_L^{D_{\max}} = \frac{2}{\pi A} \frac{(n_L)_{L-A/2}^{L+A/2}}{L} \quad \dots \dots \dots \quad (23)$$

ここに、 $(n_L) \frac{L+A/2}{L-A/2} = (n_L)_0^{\frac{L+A/2}{2}} - (n_L)_0^{\frac{L-A/2}{2}}$ で、長さが
 $L \pm A/2$ の間に入る切片の単位長さ当たりの個数である。
(23)式より、直徑が L_1 と L_2 の間にある気泡の単位体
積中の個数 $(N_V)_{L_1}^{L_2}$ は

$$(N_V)_{L_1}^{L_2} = \frac{2}{\pi A} \left[\frac{(n_L)_{L_1 + A/2}}{L_1} - \frac{(n_L)_{L_2 + A/2}}{L_2} \right] \dots (24)$$

更に、全体の切片長の範囲を k 等分して、その間隔を Δ とすれば、直径が $j\Delta \pm \Delta/2$ の範囲にある気泡の単位体積中の個数 $(N_v)_j$ は次式で与えられる。

$$(N_V)_j = \frac{4}{\pi A^2} \left[\frac{(n_L)_j}{2j-1} - \frac{(n_L)_{j+1}}{2j+1} \right] \dots \dots \dots (7)$$

文 献

- 1) 森一美, 佐野正道: 学振19委-No. 10291, 反応
501, (昭和 55 年 9 月)
 - 2) F. YOSHIDA and K. AKITA: AIChEJ, 11(1965),
p. 9
 - 3) P. H. CARDERBANK and M. B. MOO-YOUNG:
Chem, Eng. Sci., 16 (1961), p. 39

- 4) 近藤幹夫, 藤井徹也, 住田則夫, 江島彬夫, 岡部俠児: 学振19委-No. 9894, 第 3-258 (昭和 50 年 12 月)
 - 5) M. B. DONALD and H. SINGER: Trans. Inst. Chem. Eng., 37 (1959), p. 255
 - 6) N. J. THEMELIS, P. TARASSOFF, and J. SZEKELY: Trans. Met. Soc. AIME. 245 (1969), p. 2425
 - 7) G. N. ORYALL and J. K. BRIMACOMBE: Met. Trans. 7B (1976), p. 391
 - 8) 日野幹雄: スペクトル解析, (1979), p. 176 [朝倉書店]
 - 9) 小宮勤一: 「相関函数およびスペクトル」—その測定と応用—(磯部孝編) (1968), p. 182 [東京大学出版会]
 - 10) E. E. UNDERWOOD and A. WESLEY: Quantitative Stereology, (1970), p. 126
 - 11) 加藤ライジ: 直交表中心の独りで学べる実験計画法(1979), [現代数学社]
 - 12) J. S. BENDAT and A. G. PIERSOL, 得丸英勝他訳: ランダムデータの統計処理 (1976), p. 11, 12, 120 [培風館]
 - 13) I. LEIBSON, E. G. HOLCOMB, A. G. CACOSO, and J. J. JACMIC: AIChEJ, 2 (1956), p. 296
 - 14) 佐野正道, 森 一美: 鉄と鋼, 60(1974), p. 348
 - 15) 佐野正道, 森 一美, 佐藤哲郎: 鉄と鋼, 63 (1977), p. 2308
 - 16) G. A. IRONS and R. I. L. GUTHIE: Met. Trans. 9B (1978), p. 101
 - 17) 佐野正道, 森 一美, 藤田康久: 鉄と鋼, 65 (1979), p. 1140
 - 18) 小林清志: 新しい可視化技術と計測 (東海支部第 53 回講習会テキスト) (1981) [日本機械学会東海支部]
 - 19) 森 一美, 佐野正道: 鉄と鋼, 67 (1981), p. 672
 - 20) 鞭 巍, 浅井滋生, 岡本徹夫: 学振 19 委-No. 10311, 反応-504 (昭和 56 年 2 月)
 - 21) 中西恭二, 三木木貢治: 鉄と鋼, 65 (1979), p. 138