

令和 3 年 4 月 22 日現在

機関番号：82627

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04590

研究課題名(和文)油処理剤の水中散布における油粒の形状と挙動に関する研究

研究課題名(英文)Shape and Motion of Uprising Oil Droplets by Underwater Injection of Dispersant

研究代表者

宮田 修(miyata, osamu)

国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局等・研究員

研究者番号：10450678

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：海底から流出する油に油処理剤を投入する目的は、油の微細化により油の浮力を小さくし海中に分散させ2次被害を低減させることにある。一方、微細化できなかった油は、流出条件により粒径や形状を変え海面に到達する。これら油粒の大きさや形状と挙動を詳細に解析し、油処理剤の水中散布方法の最適化を図ることを目的とし、透明な円筒形の水槽底部から油を流出させ、油の粒径や形状変化、浮上速度等の挙動について油処理剤の効果を含めて調査した。その結果を用い、Cliftの分類図に倣い、Re数(レイノルズ数)やEo数(エトボス数)、及びMo数(モルトン数)により整理し油粒形状との関連付けを試みた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

油処理剤によってO/W型エマルジョンである微細化された油粒、油のみ場合の楕円やクラゲのような形状に生成された油の挙動を連続的に示すことにある。一般に、粘性液体中における液滴運動のダイナミクスは、液滴の生成過程や分裂現象では二流体粘度が関与していることが知られており、液滴の自由運動については、モートン数、エトボス数、レイノルズ数で整理できることが知られている。油処理剤が水中で機能した際のM数、Eo数、Re数の3つの定数の関連を明確にすることにより、油と油処理剤の最適な混合条件を見出し油の分散性との相関を従来のWe数のみの関連を超えて解明することに学術的な独創性が存在する。

研究成果の概要(英文)：The purpose of adding an oil treatment agent to the oil flowing out from the seabed is to reduce the buoyancy of the oil by making it finer and to disperse it in the sea to reduce secondary damage. On the other hand, oil that cannot be miniaturized reaches the sea surface by changing its particle size and shape depending on the outflow conditions. The purpose is to analyze the size, shape and behavior of these oil particles in detail and to optimize the method of spraying the oil treatment agent in water. The behavior such as shape change and ascent speed was investigated including the effect of the oil treatment agent. Using the results, we tried to associate them with the oil grain shape by arranging them by Re number (Reynolds number), Eo number (Etobos number), and Mo number (Molton number), following the classification diagram of Clift.

研究分野：海洋環境

キーワード：油処理剤 水中散布 アスペクト比 C重油 油粒の形状 油粒の挙動 浮上速度 油粒径

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2010年のメキシコ湾でのディープウォーターホライズン油井事故で初めて油処理剤の水中散布が行われ一定の成果を上げた。報告書によれば、「ROVによって約1mの細いパイプを流出口に差し込み油処理剤の散布が行われ、海面への油の流出は消滅した。」とある。しかしながら、その詳細については不明であった。その後、ノルウェーやアメリカ合衆国で油処理剤の水中散布の研究が行われ<sup>1),2)</sup>、同時に応募者らも一連の実験的研究を行った<sup>3),4)</sup>。海底から流出する油に油処理剤を投入する目的は、油の微細化により油の浮力を小さくし海中に分散させ2次被害を低減することにある。さらに、微細化することによって生物分解を促進し自然回復を図ることにある。一方、微細化出来なかった油は、流出条件により粒径や形状を変え浮上し海面に到達する。

2. 研究の目的

油処理剤の水中散布の有効性を評価するため透明な円筒形の水槽(φ0.3×1.0m)底部から油を流出させ、油の粒径や形状変化、浮上速度等の挙動について実験を行い、油の性状や油処理剤の効果を含めて調査することとした。その結果を用い、Cliftの分類図<sup>5)</sup>に倣い、Re数(レイノルズ数)やEo数(エトボス数)、及びMo数(モルトン数)により整理し油粒形状との関連付けを試みた。これら流出油に油処理剤を水中散布する場合の諸条件と水中散布をしない場合の油粒の大きさや形状とその挙動を詳細に解析し、油処理剤の水中散布方法の最適化を図ることを目的とした。

表1 Physical characteristics of oil at 20°C

mixing ratio		density $\rho$ kg/m <sup>3</sup>	viscosity $\nu$ mm <sup>2</sup> /s	Interfacial tension $\sigma$ mN/m	Oil No.	mark
RGM	DMB					
0	1	860	4	24.6	①	●
0.2	0.8	883	85	21.2	②	▲
0.4	0.6	908	207	21.0	③	□
0.6	0.4	934	688	22.7	④	○
0.8	0.2	947	2992	-	⑤	△
1	0	990	13689	13.6	⑥	□

表3 High-resolution camera

model	Library GV1400k
image	Monochrome (8bit)
resolution	1392×1040 (max.)
CCD	2/3 inch
Image sensor	6.45 μm×6.45 μm
Capture frequency	30 Hz

表2 Physical characteristics of oil containing dispersant at 20°C

Oil type	dispersal agent (%)	density $\rho$ kg/m <sup>3</sup>	viscosity $\nu$ mm <sup>2</sup> /s	Interfacial tension $\sigma$ mN/m	Oil No.	mark
DMB	1	859	9.3	0.6	⑦	×
	3	858	9.7	-	-	-
RGM	5	967	11375	0.1	⑧	◇
Dispersant	100	795	8.6	-	-	-

表4 Experimental conditions

Nozzle dia.	14, 9, 7, 4 (φmm)
Pressure	0.0161, 0.0162, 0.0165 (MPa)

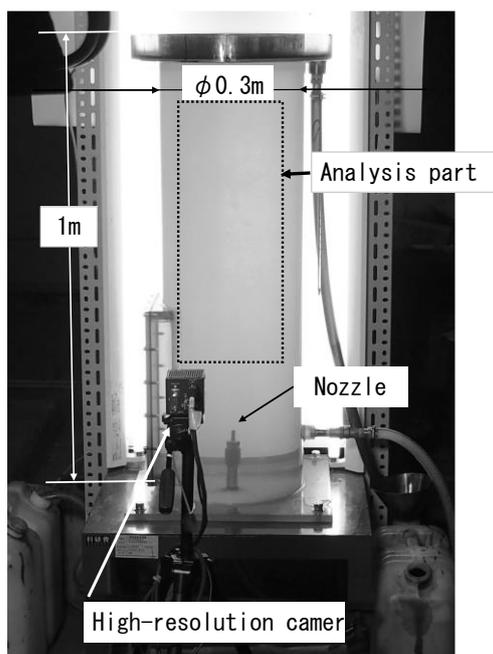


図1 Water tank and high-resolution camera

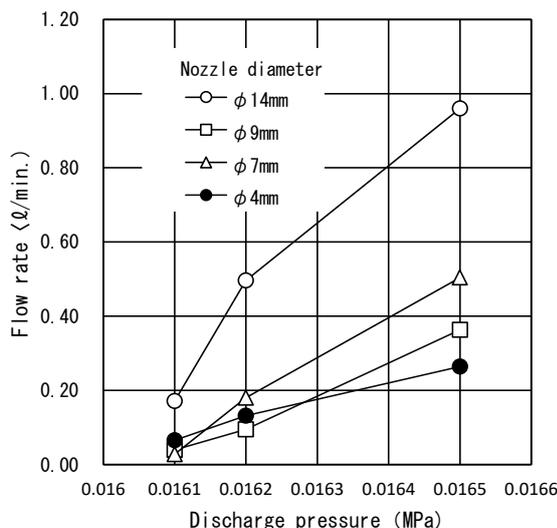


図2 Discharge pressure and outflow flow rate

### 3. 研究の方法

#### 3. 1 供使油

実験で使用する油は、A重油(以下 ISO 8217 による DMB)と C重油(以下 ISO 8217 による RMG)及び DMB と RMG の混合油で、その物性値を表 1 表 2 に示す。密度と動粘度は当所で所有する比重計(浮き秤式)と音叉式粘度計(SV-10, A&D)により求めた。水と油の界面張力は、懸濁法<sup>6)</sup><sup>7)</sup>により取得した。水と油の界面張力は、その密度差が小さくなると小さくなった。また、油と油処理剤(以下処理剤)を予め混合した場合の界面張力は懸濁法による計測法の下限值に近くになる為、参考値として取り扱う必要がある。

#### 3. 2 実験装置

実験に用いた水槽と高解像度カメラを図 1, 表 3 に示す。水槽は内径  $\phi 0.3$  m, 深さ 1.0 m の透明なポリカーボネイト製で、後方に光源(蛍光灯 32W $\times$ 2)を配置し水槽の上下で一定の照度を得るようにした。油は水槽底部のノズルから流出し、水槽上部でオーバーフローさせ油水ともに回収した。高解像度カメラによる画像の記録は 10 秒間とした。

#### 3. 3 実験条件

実験は表 4 に示す流出ノズルの口径 4 種と吐出圧力 3 種(バルブ閉鎖時 0.0160 MPa)とした。実測した吐出圧力と流出量(DMB)の関係の一例を図 2 に示す。ノズル口径が小さいと管路抵抗が大きくなり流出量は小さくなる。油の粘度が大きい場合も同様なるが、その流出量を正確に制御するのは難しいため、ノズル口径と吐出圧力をパラメータとし実験を行った。

#### 3. 4 解析方法

流出油の油粒の形状や挙動の解析は、市販の流体計測ソフト(Library Flow-PTV)により行い、水槽内での油粒の位置、浮上速度、投影面積を取得した。各油粒の投影面積より油粒を球と仮定し、その直径を算出し体積基準で累積頻度が 50%となる粒子径  $d_{50}$  を求めて油粒径とした。更に、記録した画像から油粒のアスペクト比(縦/横)を求めた。

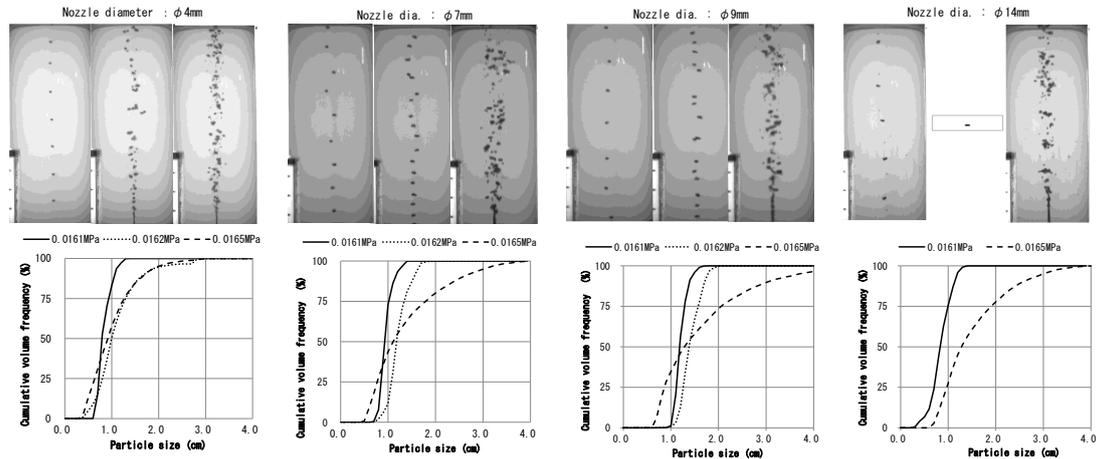


図 3 Cumulative volume frequency and its image for each nozzle dia. and discharge pressure in the case of DMB

### 4. 研究成果

#### 4. 1 油粒径 $d_{50}$ と解析画像

DMB(低粘度の油)でノズル口径を変化させた場合の油粒の浮上状況の解析画像とその油粒分布の解析結果を図 3 に示す。その結果、吐出圧力が小さいと累積頻度曲線の立ち上がりが急になり、粒径分布は狭くなった。すなわち解析画像からも同じ粒径の油粒がほぼ等間隔で浮上していることがわかる。一方、吐出圧力が大きくなると累積頻度曲線の立ち上がりが緩やかになり、粒径分布は広がった。油粒は油粒群となり分裂や合一が起こる様子が観察された。特に 0.0165MPa では、ノズル出口で連続した流れを形成した後に油粒となった。静的な条件に近い吐出圧力の小さい時の油粒径は界面張力に依存する。一方、吐出圧力が大きい時の油粒径は大きくなる。しかし、大きくなった油粒は、周囲の水の影響を受け分離したり、合一したりする。

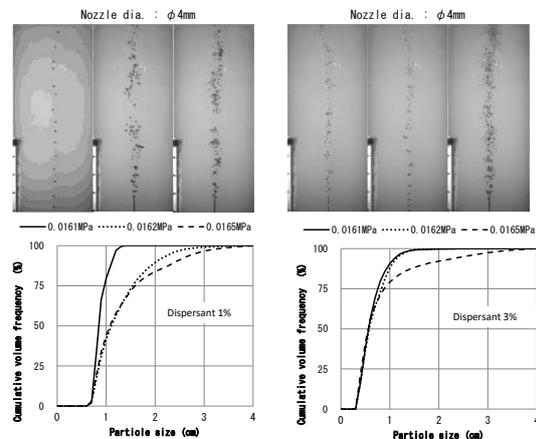


図 4 Cumulative volume frequency  $d_{50}$  of DMB containing dispersant and its image

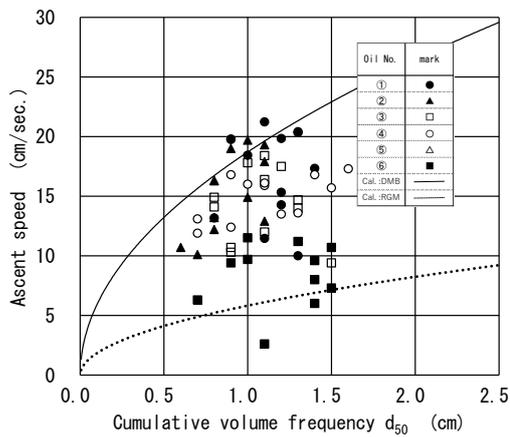


図5 Relationship between cumulative volume frequency  $d_{50}$  and ascent speed

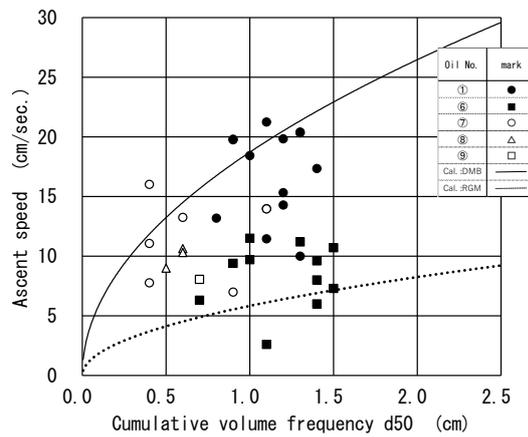


図6 Cumulative volume frequency  $d_{50}$  and ascent speed of oil containing dispersant

予め油処理剤を混合した油を用いた実験の解析画像と油粒径分布の解析結果を図4に示す。油処理剤が多くなると吐出圧力に関わらず油粒径分布が小さい方にシフトし、油粒径も小さくなった。一般的に油処理剤は水面上の油に対し散布し、攪拌する必要がある。本実験では、浮上する油の浮力と水から受ける抗力による力によって微細化した。

#### 4. 2 油粒の浮上速度

油粒径  $d_{50}$  と浮上速度  $U$  との関係を図5及び図6に示す。図中に示した実線と破線は、それぞれRGMとDMBで(1)式<sup>9,10</sup>を用い計算した結果である。この時、抵抗係数  $CD$  は油粒の形状を球体としレイノルズ数を考慮して0.5とした。<sup>11)</sup>

$$U = \sqrt{\frac{4 d_{50} g}{3 C_D} \left(1 - \frac{\rho_o}{\rho_w}\right)} \quad (1)$$

ここで、 $d_{50}$ :油粒径、 $g$ :重力加速度、 $CD$ :抵抗係数、 $\rho_o$ :油の密度、 $\rho_w$ :水の密度である。図5によればOil No.①からOil No.⑥の順に油の密度が大きくなると浮上速度は小さくなる。一方、油粒径  $d_{50}$  が同じであっても浮上速度が異なる場合がある。これは、図3に示したように吐出圧力の大小の違いに由来し、一つの油粒が浮上する場合に比べ、多数の油粒が浮上する場合は上流側の油粒の影響を受けているためと考えられる。

図6に示す処理剤が含まれた場合では、油粒径  $d_{50}$  が小さくなり浮上速度も小さくなった。処理剤の投入量をさらに増やすことにより油の微細化が進み、浮上速度も小さくなる。過去の著者らの実験<sup>3)4)</sup>によればA重油に油処理剤を5%投入した場合、その油粒径は $30 \mu m$ 程度になり浮上速度も $5 \text{ cm/sec.}$ 程度を示した。

#### 4. 3 油粒の形状と挙動

油粒の挙動の一例とし、DMBの油粒の位置・浮上速度・断面積の変化を図7に示す。それぞれの油粒は左右に移動しながら浮上して行く。しかし、実際にはらせん状に浮上していることを目視している。a)が解析開始の画面で、b)~d)はa)で示した矢印の油粒のb)軌跡とc)浮上速度とd)断面積から求めた油粒径の変化を示す。b)の横方向の変化が大きい時は、c)の浮上速度は小さくなる。一方、d)の油粒径は浮上速度の増減とは反対の傾向を示した。シリコン油を対象とした液滴挙動に関する文献<sup>8)</sup>によれば「液滴が蛇行する

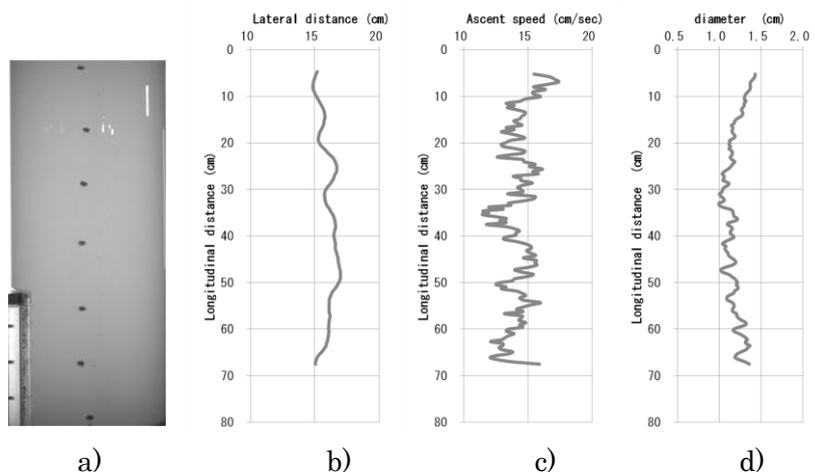


図7 An example of the behavior of oil particles (nozzle dia.:  $\phi 9 \text{ mm}$ , discharge pressure  $0.0161 \text{ MPa}$ )

際、曲がり角で形状が扁平し抵抗が大きくなり上昇速度が減速する。その後、表面張力により形状が復元し加速すると推測できる。」とあり、本実験のDMBでも同様な挙動を示した。図8及び図9にDMBとRGMの油粒の吐出圧力が小さい場合の画像から求めたアスペクト比(縦/横)

の頻度を示す。両者のアスペクト比（縦/横）を比較すると DMB の方が小さく、その範囲も 0.4~0.8 と広く分布していることが分かる。一方、RMG のアスペクト比の範囲は狭く、DMB に比べ円に近い。

4. 4 Clift の分類図による評価  
Clift の分類図に倣い、実験結果の  $d_{50}$  を用いて慣性力と粘性で示されるレイノルズ数 ( $Re = \rho d_{50} U / \mu$ ) と慣性力と界面張力で示されるエトベス数 ( $Eo = g d_{50}^2 \Delta \rho / \sigma$ ) で整理した結果を図 10 に示す。Eo 数と Re 数には比例関係があり、油と水の物性値で示されるモルトン数 ( $M = g \mu^4 \Delta \rho / \rho^2 \sigma^3$ ) のオーダーを Log M で図中に示すと、C 重油と A 重油の割合によって変化する。また、Re 数のオーダーが小さくなると図 8 及び図 9 に示したように油粒が楕円から円形に近づくように変化した。油処理剤が含まれる油は界面張力の減少により Eo 数は 10 倍から 100 倍程度大きい値を示した。これらの結果は、Clift の分類図の楕円体から球体の範囲と重なることを確認した。

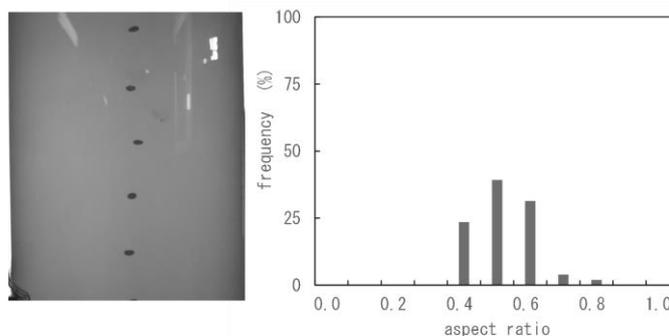


図 8 Aspect ratio of DMB oil particles  
(nozzle dia.:  $\phi 4$ mm, discharge pressure: 0.0161MPa)

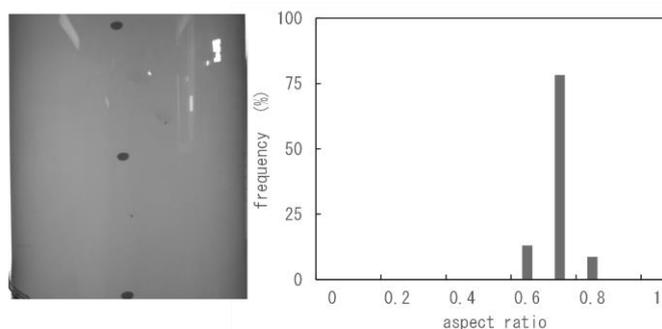


図 9 RMG oil grain aspect ratio  
(nozzle dia.:  $\phi 4$  mm, discharge pressure: 0.0161 MPa)

<引用文献>

- 1) Brandvik, P. O. Johansen, F. Lervik, P. Daling, Droplet Breakup in Subsurface Oil Release -Part 1: Experimental Study of Droplet Breakup and Effectiveness of Dispersant Injection, Marine Pollution Bulletin, Vol. 73, pp.319-326, 2013
- 2) Belore, R., Subsea Chemical Dispersant Research, Proceedings of 37th Arctic and Marine Oil Spill Program (AMOP) Technical Seminar, Environmental Canada, Canmore, Canada, 2014
- 3) 宮田 修, 他, 沈船からの流出油に対する油処理剤の水中散布による分散性能に関する研究, 日マリ学誌, 49-6, 117-123, (2014)
- 4) 宮田 修, 他, 油処理剤の水中散布による分散化油粒の浮上速度, 日マリ学誌, 51-3, (2016)
- 5) Clift R., J.R. Grace, and M.E. Weber, Bubbles, Drops and Particles, Academic press, New York, 1978.
- 6) 近藤 保: 界面化学, 三共出版(株), 2017年2月1日, 第2刷
- 7) 北原 文雄: 界面. コロイド化学の基礎, (株) 講談社サイエンティフィック, 2017年7月20日, 第23刷
- 8) 片山 智喜, 他, 液-液系二相界面の挙動と物質の研究, 可視化情報学会論文集, Voi. 21 No. 2 (2001年2月)
- 9) 間島 隆博, 他, 流れ場における水没タンクからの油流出率推定法, 日本船舶海洋工学会講演論文集, 第4号, 491-494, (2007)
- 10) 城田 英之, 他, 船舶からの油及び有害液体物質の排出. 流出による海洋汚染防止に資する研究, 海上技術安全研究所報告, 第9巻, 第3号, 平成21年度総合報告.
- 11) 笠原 英司 編著: 現代水力学, (株) オーム社, 平成22年2月22日, 第27刷.

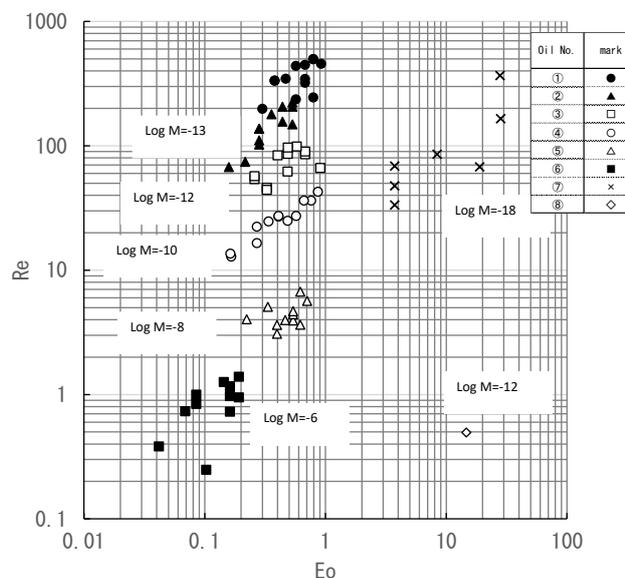


図 10 Relationship between ETVOS number and Reynolds number

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 宮田 修、亀山 道弘	4. 巻 -
2. 論文標題 油の水中挙動に及ぼす油性状の影響	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本マリンエンジニアリング学会誌	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 宮田 修、亀山 道弘
2. 発表標題 海底から流出する油の浮上に関する実験的研究
3. 学会等名 海上技術安全研究所報告、令和元年第19回研究発表会講演集
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮田 修、亀山 道弘
2. 発表標題 油処理剤の水中散布における油粒の形状と挙動 - 処理剤を含む油粒の形状と挙動の変化 -
3. 学会等名 第89回マリンエンジニアリング学術講演会公演論文集
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮田 修
2. 発表標題 油処理剤の水中散布における油粒の形状と挙動 粘度による油粒の形状と挙動の変化
3. 学会等名 日本マリンエンジニアリング学会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	原 正一  (hara shoichi)  (60399524)	国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局 等・研究員  (82627)	2019/3 削除
研究 分担者	亀山 道弘  (kameyama michiro)  (40373427)	国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局 等・研究員  (82627)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------