油濁対応における混相流体技術* (高粘度油中水型エマルジョンの管内輸送)

Multiphase Flow Techniques in Oil Spill Response (Pipeline Flow of High-viscosity W/O emulsion)

藤 田 勇**
FUJITA Isamu

Abstract Oil spill response requires multiphase flow techniques in various aspects. Among them, methods for treating water-in-oil emulsion, which is often formed when oil spills on the sea surface, are very important. W/O emulsion drastically increases its viscosity and makes oil recovery operation very difficult. This paper presents friction loss reduction techniques in a pipeline flow as well as rheological behavior of the emulsion. For friction reduction, water injection and chemical surfactant injection were experimentally studied. It was found that the both methods can reduce the friction loss to a considerable extent. They were applied to practical use for oil recovery vessels.

Keywords: Oil spill, W/O emulsion, Pipeline, Friction loss, Water injection, Chemical surfactant

1. 緒 言

近年タンカーからの油流出事故は減少傾向にある。Fig.1 に示す ITOPF の統計[1]に拠れば、1970 年代において流出量が 700t を越える比較的大規模の油流出事故の発生件数は年平均 25.2 件であったのに対し、2000 年代に入ってから年平均 3.6 件である。流出量ベースで見ても 1970 年代の年平均油流出量は 314,200t であるのに対し、2000 年代は年平均 24,000t である。我が国においてもナホトカ号事故(約 6,400kl 流出)が発生した 1997 年以降、幸いにして船舶からの大規模な油流出事故を経験していない。しかしながら大規模油流出事故の発生リスクは、世界的には 2007 年の韓国における Hebei Spirit 号の原油流出にも見るように、依然として存在している。更にタンカー以外からの油流出として 2010 年のメキシコ湾原油流出事故[1]は未だ記憶に新しい。

加えて、2011 年に発生した東日本大震災においては、各所で石油タンクが被災し、相当量の油が

流出した。震災による流出油は津波火災の要因として考えられ[3]、また底泥への油の沈殿などが報告されており[4]、平常時の油流出とは異なる様相を示す油流出のリスクを明らかにした。

Fig.1 Oil spill trend from tankers.

* 2013.4.30 受付

** (独)港湾空港技術研究所 混相流体研究チーム・油濁対策研究チーム(併任) 〒239-0826 横須賀市長瀬 3-1-1
TEL: (046)844-5065 FAX: (046)844-0575 E-mail: fujita@pari.go.jp

洋上での流出油対応としては、油回収機を用いた回収、油処理剤を用いた分散処理、メキシコ湾原油流出事故で用いられた現場焼却などが主な方法であるが、技術開発の現場においては、混相流体に関連する技術や知見を用いる場面が比較的多い。例としては気液二相流による真空吸引式油回収装置[5]や、高圧水エダクタや蒸気エジェクタを用いた油回収装置[6,7]あるいはエマルジョン分解[8]、水ジェットやバブルカーテンによる浮遊油の漂流制御[9,10]、噴流を使った分散促進[11]などを挙げることができる。

本稿では油濁対策で用いられる混相流体技術の一例として、液液混相流の応用である高粘度エマルジョン化油の管内輸送における摩擦損失の低減法に関して著者が行った一連の研究を紹介する。具体的には注水による摩擦損失の低減、並びに界面活性剤の添加によるエマルジョン分解と管摩擦損失の低減への応用を扱った。これらの手法が効果があることはPeigne等[12]により指摘されていたことであるが、本研究では注水潤滑に関しては、気液二相流における整理法を応用して最適注水量を明らかにしている。更に研究成果を実際の油回収船の装備として実用化しているの、その点についても触れる。

2. エマルジョン化油の管摩擦損失の低減

2.1 流出油の風化

海上に流出した油は時間の経過とともに、Fig.2に示すように、蒸発、自然分散、溶解、沈降、生物分解及びエマルジョンの形成などの風化作用を受け[13]、それに伴って物理的な性状を変化させる。各変化の進行状況は油種や気象海象条件に強く依存する。その中で、洋上での油回収の効率や分散処理の効果は、エマルジョン化の影響を強く受ける。エマルジョン化では、主として波浪などの攪拌作用により、Photo 1に示す様に、海水が小さな液滴として油の中に分散した状態(W/O Emulsion)で取り込まれる。写真において明るく見える部分が水であり、暗い部分が油の相である。Fig.3は石油連盟がネット上で公開している流出油の性状変化データベース[14]をもとに作成した冬期の荒れた海でのC重油と代表的な原油であるArabian lightの風化を示した図であるが、時間の経過とともにエマルジョン化が進行し、油の中に取り込まれる水の量が増加し膨潤する

とともに、粘度が飛躍的に増大することが分かる。

Fig.2 Weathering process of spilled oil.

Photo 1 Microscopic image of water-in-oil emulsion.

Fig.3 Viscosity increase by emulsification.

1997年に日本海で発生したナホトカ号による油流出事故においても、流出油は1,000,000mPa.sを超すエマルジョンを形成したため、回収や移送は困難を極めるものであった。多くの油回収機、油回収船では配管による回収油の輸送行程が含まれるため、そうした機器における高粘度油への

対応が求められる。また、油処理剤による分散処理においてもエマルジョン化により高粘度化した油に対しては効果は小さくなる。目安として、通常型の油処理剤の適用範囲が 2,000cSt 以下、高粘度油用の D1128 型の油処理剤の適用範囲が 100,000cSt 以下と言われている[15]。

Fig.4 Friction loss measurements of flow of W/O emulsion in horizontal pipes.

Fig.5 Correlation between friction loss coefficient and modified Reynolds number.

2.2 重油エマルジョンの管内流動特性

前節においては、エマルジョンを形成した油は粘度が増大すると書いたが、厳密にはエマルジョン化によりニュートン流体から非ニュートン流体へとレオロジー的な変化が生じる。ここではエマルジョン化した C 重油の管内流摩擦損失の測定結果を示す。市販の C 重油に等量の水を加え自由水が無くなるまで数時間攪拌し調製したエマルジョン化油の水平直管における摩擦損失を Fig.4 に示す。両対数グラフにおいて、生の C 重油は傾

きが 1 の直線に乗り、層流における摩擦損失の式 $64/Re$ が当てはまる。一方でエマルジョン化した油の摩擦損失は流量の増加に対して傾きは 1 より小さくなり擬塑性流体的に振る舞うことがわかる。重油エマルジョンの管内摩擦損失を $\Delta P = \frac{\lambda}{d} \frac{\rho}{2} U_{avg}^2$ の形で整理する。エマルジョン化油の粘度特性を

$$\tau = \tau_r \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_r} \right)^{1-m} \quad (1)$$

と仮定すると円管内の層流の壁面剪断力は、

$$\tau_w = \frac{\tau_r}{\varepsilon_r^{1-m}} \left(\frac{dU}{dr} \right)^{1-m} = \frac{\tau_r}{\varepsilon_r^{1-m}} \left(\frac{4-3m}{1-m} \right)^{1-m} \left(\frac{U_{avg}}{r_w} \right)^{1-m} \quad (2)$$

と表すことができる。管摩擦損失と壁面剪断力は $\Delta P = \frac{2\tau_w}{r_w}$ の関係にあるので、摩擦損失係数 λ は、

$$\lambda = \left(\frac{4-3m}{4-4m} \right)^{1-m} \frac{64}{Re'} \quad (3)$$

となる。ここで、 Re' は擬塑性流体における等価的なレイノルズ数として、

$$Re' = Re \left(\frac{U_{avg}}{\varepsilon_r d} \right)^m \quad (4)$$

で定義している。 $\tau_r=50,000\text{mPa}\cdot\text{s}$ 、 $\varepsilon_r=1.0\text{s}^{-1}$ 、 $m=0.27$ を仮定して実験結果を整理したものを Fig.5 に示す。測定値は生の C 重油も含めてマイナス乗の線に乗っており、整理式が妥当なことがわかる。

2.3 注水による摩擦損失低減法

エマルジョン化した油を管路により移送する場合には摩擦損失を低減することが必要になる。少量の水を添加すると Fig.6 に示すような油のコアの周りを水が環状に取り巻いた CAF (Core Annular Flow) が形成され粘度の小さい環状水が剪断変形を主として受け持つので管摩擦損失を低減することができる。油-水系における CAF の形成は古くから知られており[16]、その後石油産業界で、高粘度油の生産井における潤滑方法として提案されている[17]。更に流出油回収移送時への応用を目的とした研究も行われている[18,19]。著者においても、油回収船への応用を念頭に実験による検討を行った[20]。

Fig.6 Schematic of CAF (Core Annular Flow).

Fig.7 Schematic of experimental setup for CAF.

Fig.8 Experimental conditions on flow pattern chart.

Fig.7 に示す装置を用いて、水の添加量に対する摩擦損失の低減効果を実験的に検証した。3 種類の内径が異なる円管にチューブポンプによりエマルジョン化油を流し、配管途中の枝管より水を添加した。エマルジョン化油は、C 重油と水を混ぜて調製した含水率は 67.5% のものを使用した。エマルジョン化油の粘度は 39,000mPa.s (ずり速度 1.0s^{-1} の時) であった。実験条件を Fig.8 に示す。横軸は添加水の見かけの流速、縦軸は油の見かけの流速である。破線は Bannwart[21] による流動様式の整理である。 β は注水率で、総流量に占める水の割合として

$$\beta = \frac{Q_w}{Q_c + Q_w} \quad (5)$$

で定義した。

実験では Fig.7 に示すような管路の曲がり部の影響は大きく無く、水の注入により圧力損失の低下が計測された。実験結果の整理モデルとして気液二相流で用いられるボイド率を用いる方法を援用した。Lottes 等[22]は気液二相流の管摩擦損失に対して、

$$\frac{\Delta P_F}{\Delta P_W} = (1 - \alpha)^{-m} \quad (6)$$

という式を提案している。本研究では $1 - \alpha$ の液ホールドアップの部分に注水率 β で読み替えて

$$\frac{\Delta P_F}{\Delta P_W} = \beta^{-m} \quad (7)$$

というモデルを導入した。 m の値は Lottes は 2 を用いている。気液系における他の研究においては常圧の空気-水系の測定から $m=1.4 \sim 2.25$ が得られたという報告や、垂直管の液流速が速い範囲に対しては気液二相流の測定では $m=1.75$ が良く成立するという報告がある[23]。理論的には、油と水が同じ物性を持っていると仮定する (即ち単相流と仮定) し、摩擦損失係数として Blasius 式を用いると m の値は 1.75 となる。一方油が剛体と同じように振る舞うと仮定すると m は 2.0 となる。式 (7) を用いて実験結果を整理した。 β と摩擦損失比の関係を図 9 に示す。

Fig.9 Correlation between β and $\Delta P_F / \Delta P_W$.

Fig.10 Optimum water addition rate.

Fig.11 Factors affecting friction loss of emulsion flow.

図中の×印は Ueda[17]によるものである。 m として 2.15 を仮定すると摩擦損失と β の間に良い相関が得られた。このモデルを用いて最適な水の添加量を求めた。Fig.10 に示すように、エマルジョン化油に対して 10% 程度の水を添加した場合が最も摩擦損失を小さくできるという結果になった。この様に注水量に最適値が存在するのは、Fig.11 に示すように、水の添加量が小さい場合には β が小さいので $\Delta P_F / \Delta P_W$ が大きく、逆に水の添加量を適正值を越えて大きくした場合には、 $\Delta P_F / \Delta P_W$ は小さいが、一方で水の見かけの圧力損失 ΔP_W 自体が大きくなるので ΔP_F は増大することによる。

2.4 薬剤添加による摩擦損失の低減法

油濁防除においては回収の他に分散処理も行われる。分散処理では油処理剤を浮遊油に対して散布し、海中に油を分散希釈し無害化を図るものである。油処理剤は界面活性剤を含んでおり、こ

うした薬剤をエマルジョン化油の管路輸送における摩擦損失低減用の添加剤としても用いることができる。

予備実験としてエマルジョン化油に界面活性剤を少量添加した場合のエマルジョンの分解特性を紹介する[24]。B 型粘度計にエマルジョン化油を入れてずり速度を与えた場合の剪断応力を測定する。あるタイミングで界面活性剤を少量滴下し、その後の剪断応力の時間変化を計測した。結果を Fig.12 に示す。界面活性剤を添加すると、時間の経過に伴って、エマルジョンが分解され、剪断応力が減少することがわかる。減少の割合は剪断速度が大きい程大きい。剪断応力の時間変化を

$$\frac{\tau}{\tau_0} = \exp\left(-\frac{t}{t_0}\right) \quad (8)$$

で表して解析を行うと、時定数 t_0 はずり速度の二乗に反比例することがわかる。このことは界面活性剤を添加した際のエマルジョンの分解速度が攪拌に伴う散逸エネルギーに比例することを意味していると考えられる。この現象を使うと Fig.13 に示すロータリー型の攪拌装置を用いて配管による移送途中でエマルジョンを分解することができる。処理されたエマルジョンは暫く静置すると Photo 2 に示すように油と水に分離し、分離した油相の粘度はエマルジョンを形成する前の油に近いものに戻る。

Fig.12 Emulsion breaking by surfactant addition.

Fig.13 Inline rotary emulsion decomposer.

Photo 2 Demulsification by rotary decomposer,
(a)no treatment, (b)only surfactant added,
(c)surfactant added and agitated by the device.

Fig.14 Schematic of experimental setup for friction reduction by surfactant addition.

完全なエマルジョン分解を行わず、管路における摩擦抵抗を低減するだけで良い場合は強制的な攪拌を行わなくてもよく、少量の界面活性剤を管路に注入することで摩擦を低減することができる。Fig.14 に示す装置を用いてエマルジョン化油の管内流に界面活性剤を添加する実験を実施した[25]。実験では、薬剤の添加量を一定に保ち、油の流量を徐々に増加させて管路で発生する摩擦損失を測定した。添加薬剤としてはスルホコハク酸ジエチルヘキシルナトリウム溶液、モノラウリン酸ソルピタン溶液、一般型油処理剤、セルフ

ミキシング型油処理剤等を用いた。例としてモノラウリン酸ソルピタン溶液を添加した場合の摩擦損失を Fig.15 に示す。エマルジョン化油に対して薬剤を添加した場合、摩擦損失が減少することがわかる。他の薬剤を用いた場合も、程度に差はみられるものの、いずれの場合も摩擦損失は低下した。一般型油処理剤の場合の薬剤濃度と摩擦損失の低減率との関係を Fig.16 に示す。1%の添加で摩擦損失を 1/10 に減らすことができることがわかる。界面活性剤の添加による摩擦損失の低減のメカニズムは前節の CAF とは異なる。界面活性剤の代わりに水を注入した場合、十分な量の水添加ではほぼ CAF 理論が予測する摩擦損失の低下が見られたが、界面活性剤の添加量と同程度の水添加では圧力の降下現象は見られなかった。このことは薬剤の注入においては、単なる CAF の形成ではなく、界面活性剤によるエマルジョン分解が管壁近傍において発生していることを示すものと考えられる。

Fig.15 Friction loss reduction by surfactant injection.
Surfactant:Sorbitan cocarate, 5 times diluted with EtOH.

Fig.16 Effect of surfactant injection ratio.
Surfactant:oil dispersant AB-3000.

3. 油回収船への適用

前章で述べた管摩擦損失の低減手法は実際の油回収船における装備として活用されている。注水による方法は大型油回収船「白山」における回収油の船外排送システムの一部として機関排熱を利用したタンク内バルクヒーティングと組み合わせ実用化されている[26]。一方、薬剤添加による方法は、浮遊堰式油回収機を搭載した油回収船の支援装置として実用化されている。ここでは薬剤添加法の実装について紹介する。浮遊堰式油回収装置の構造を Fig.17 に示す。

Fig.17 Oil water separator embedded weir skimmer.

Fig.18 Surfactant injection system for oil recovery vessel.

この装置の大きな特徴はいわゆる堰式の油回収装置に釣り鐘状の油水分離器を組み合わせた点である。油水分離器内部では重力分離により油を容器の上方に集め、下部からはプロペラにより自由水を強制排水する。この様な仕組みにより、自由水をほとんど含まない高濃度の油回収を実現している[27]。反面、高粘度のエマルジョン油を回収した場合、管路閉塞を起こし易い弱点を持

つ。その為、管路内の摩擦損失を低減させる必要があり、Fig.18 に示す薬剤注入システムを増設することで問題の解決を図ることとなった。システムでは油回収ポンプの吸い込み圧力に応じて薬剤注入量を調整するフィードバック制御を行っている。Photo 3 に示す国土交通省近畿地方整備局の新造環境整備船「クリーンはりま」の油回収装置でも採用されている。

Photo 3 New oil recovery vessel "Clean Harima".

4. 結 言

海上流出油への対応技術の内、混相流体的な話題として、エマルジョン化した油の管摩擦損失低減方法についての実験を主体とした研究と、実船での成果の活用を紹介した。油濁対策においては、序論でも述べたように、混相流体に関連する技術を必要としており、今後も更なる研究開発が求められているところである。

Nomenclature

ΔP_F	: pressure drop of multiphase flow	[Pa/m]
ΔP_W	: pressure drop of water flow	[Pa/m]
d	: diameter	[m]
m	: rheological parameter	[-]
Q_c	: oil flow rate	[m ³ /s]
Q_w	: water flow rate	[m ³ /s]
r	: radius	[m]
Re	: Reynolds number	[-]
Re'	: modified Reynold number	[-]
t	: time	[sec]
t_0	: time constant for emulsion breaking	[sec]
U	: velocity	[m/s]
U_{avg}	: averaged velocity	[m/s]

Greek letters

α	: void fraction	[-]
----------	-----------------	-----

β	: water fraction	[-]
ε	: shear rate	[1/s]
ε_r	: shear rate at reference state	[1/s]
λ	: friction coefficient	[-]
ρ	: density	[kg/m ³]
τ	: shear stress	[Pa]
τ_r	: shear stress at reference state	[Pa]
τ_w	: wall shear stress	[Pa]
τ_0	: initial shear stress	[Pa]

参考文献

- [1] Huijter, K., Trends in Oil Spills from Tanker Ships 1995-2004, 28th Arctic and Marine Oilspill Program (AMOP) Technical Seminar, 7-9, June 2005, Calgary, Canada (2005).
- [2] National Commission on the BP Deepwater Horizon Oil Spill and Offshore Drilling, Deep Water-The Gulf Oil Disaster and the Future of Offshore Drilling-Report to the President, Jan. (2011).
- [3] Shinohara, M., Ogawa, Y. and Matsushima, S., Fires in Kesennuma Following the 2011 Great East Japan Earthquake, Bulletin of Japan Association for Fire Science and Engineering, Vol. 62(3), 16-20 (2012).
- [4] Takahashi, S., et al., Urgent Survey for 2011 Great East Japan Earthquake and Tsunami Disaster in Ports and Coasts, Technical Note of the Port and Airport Research Institute, No.1231, 75-78 (2011).
- [5] Fujita, I., et al., An Onboard Air Conveyer Oil Skimmer, Conference Publication of Oceans 2006, 1-6(CDROM) (2006).
- [6] Fudo, M., The Development of a Handy Oil Skimmer, Sea Technology Magazine, June (2005).
- [7] Fujita, I., et al., A New Oil Recovery System using Steam-driven Ejector, Conference Publication of Oceans 2007-Europe, 1-6(CDROM) (2007).
- [8] Fujita, I., et al., Steam Jet Pump for Oil Recovery and Reformation, IOSC, Vol. 2005, 589-593 (2005).
- [9] Nash, J. H. and Johnson, M. G., Coherent, Plunging Water Jets for Oil Spill Control, IOSC, Vol.1981,655-660 (1981).
- [10] Eidnes, G., et al., Containing Oil Spills by Use of Air Bubbles, ISOPE (2013).
- [11] Iwasaki, A., et al., Dispersion of Spilled Heavy Oil by Water Jet, JSME Fluid Eng. Div. Conference Publication, 1-4(CDROM) (2006).
- [12] Peigne, G. and Cessou, M., Improving the Pumping of Viscous Oil by the Use of Demulsifiers or by an Annular Water Injection, IOSC, Vol.1989,175-180 (1989).
- [13] Fingas, M., The Basics of Oil Spill Cleanup 2nd edition, 39-50, CRC Press (2000).
- [14] PAJ, Database of Property Change of Spilled Oil (in Japanese), <http://www.pcs.gr.jp/doc/keijihenka/jdatabase.html>.
- [15] Marine Disaster Prevention Center, Oil Spill Response Manual, First edition (in Japanese), p.40 (2000).
- [16] Charles, M., et al., The Horizontal Pipeline Flow of Equal Density Oil-Water Mixture, Can. J. Chem. Eng., Vol.39(1), 27-36 (1961).
- [17] Prada, V., et al., Modeling of Vertical Core Annular Flows and Application to Heavy Oil Production, ETCE2000 & OMAE2000 Joint conference, CD-ROM, February 14-17, New Orleans (2000).
- [18] Ueda, K. and Yamanouchi, H., Friction Loss Reduction in Pipeline Flow of High Viscosity Recovered Oil (in Japanese), 73rd JIME conference, 103-104 (2005).
- [19] Asakura, K., et al., Pressure Loss of Water-Oil Core Annular Flow, Proc. of Jpn. Soc. Mech. Eng. (Fluid Eng.), September 9-10, 483-486 (2000).
- [20] Fujita, I., et al., Friction Loss Reduction by Water Injection in Pipe Line Flow of Heavy Oil Emulsion, Annual Journal of Civil Engineering in the Ocean, JSCE, Vol.25, 1023-1028 (2009).
- [21] Bannwart, A.C., et al., Flow Patterns in Heavy Crude Oil-Water Flow, J. Energy Resource Technology, Vol. 126(3), 184-189 (2004).
- [22] Lottes, P. A. and Flinn, W. S., A Method of Analysis of Natural Circulation Boiling Systems, Nucl. Sci. Eng., Vol.1, 420 (1956).
- [23] Ueda, T., Gas-Liquid Two Phase Flow, 34-35, Yokendo (1981).
- [24] Fujita, I., et al., Study on Emulsion Breaking of Spilled Oil, Proc. of 19th JASNAOE Ocean Engineering Symposium, Oct. 18-20, CD-ROM (2006).
- [25] Fujita, I., Friction Loss Control of Heavy Oil Emulsion in Pipe Line by Surface Active Agents, J. Civil Eng. B-3, JSCE, Vol.27(2), 1_1027-1032 (2011).
- [26] Development of Advanced Offloading System of Recovered Oil for Large Scale Oil Recovery Vessel "Hakusan" (in Japanese), Technical Report of Niigata Research and Engineering Office for Port and Airport, No.10, 119-124 (2010).
- [27] Fujita, I., et al., A New Weir Skimmer Test for an Oil Recovery Vessel Dr.Kaiyo, Conference Publication of OCEANS 2008 (CD-ROM), April 8-11, 1-5 (2008).