静 止 水 面 上 で の 油 膜 の 拡 が り

——油膜内の粘性抵抗の拡がり速度に及ぼす影響——

高 橋 照 男・北 村 吉 朗
中 田 賢 三*

岡山大学工学部 工業化学科[†]

静止水面上での油膜の 1 次元方向への拡がり速度が実験的に研究された。拡がり係数の小さな油を用いれば比較的小規模な実験装置で広範囲な油膜の挙動を実験的に検討できることが明らかにされている。油の粘度を十分に大きく保って拡がり係数のみを小さくするのは困難であるため、拡がり係数の小さな油を用いて実験を行うには、まず油膜内の粘性抵抗が拡がり速度に及ぼす影響を知る必要がある。

表面張力が支配的となる領域においては、油の粘度が水の粘度の 5 倍以下であれば拡がり速度は油の粘度の影響を受けることが明らかにされた。また重力と表面張力が同時に支配的な力となる領域においても同じ影響が観察された。両方の領域における拡がり速度が油膜内の粘性力による補正項を含む実験式によって相関されている。

緒 言

水面上での油の拡がりに関する工学的研究が近年活発に行われるようになった。これは大規模な油の流出事故などによる海洋などの汚染防止のために油の拡がり速度を予測する必要性が生じたことと密接に関連している。

水面上での油の拡がりに作用するのは重力、粘性力、表面張力などである。Fay¹⁾はこれらの力の作用を次元解析し、油の拡がりを重力-慣性力支配域、重力-粘性力支配域、表面張力-粘性力支配域の三つに分けることを提案している。その後、Hoult²⁾、Fannelop³⁾、海野ら^{4,7)}はいずれもこの 3 領域に分けて油の拡がり速度を理論的あるいは実験的に研究している。また最近、Huh ら⁵⁾は重力、表面張力、粘性力の三つが同時に作用する場合の拡がり速度を理論的に解析している。

さてこれら既往の研究結果と実際の油の流出事故などの報告例との間には大きな差があることが知られている⁴⁾。もちろんこの差は潮流、風、波などに起因するものであるが、これらの外力の影響を含めて油の拡がりを実験的に検討する際最も大きな障害になるのは実験装置の大きさや流出油量の程度であろう。比較的小規模な装置でできるだけ少量の油を用いて広範囲の油膜の挙動を調べるには拡がりにくい油、すなわち拡がり係数(拡散圧)の小さな油を用いるのも一方法と思われる。

また従来の研究では油は水に比べ粘度が十分に大きい

ため油膜側の速度勾配は小さくその粘性抵抗は無視できると仮定されており³⁾、実験的にも油の粘度の影響は無視されてきた。しかしながら油の粘度を十分に大きく保ち拡がり係数を広範囲に変化させるのは困難であるため、拡がり係数の小さな油を用いて実験を行うには、油側の粘性抵抗が拡がり速度に及ぼす影響を知る必要がある。

そこで本研究では、まず表面張力が支配的となる領域において油膜側の粘性抵抗が拡がり速度に及ぼす影響について検討し、さらに重力が影響する領域へもこの考え方を拡張することを試みた。

1. 理 論

静止水面に油が流出した後十分な時間が経過すれば、油膜は十分に薄くなり、油膜の拡がりに関与するのは次の二つの力のみとなる。すなわち油膜を上げようとするのは拡がり係数 s (spreading coefficient = $\sigma_w - \sigma_o - \sigma_{ow}$) による力で、妨げるのは粘性力である。今 1 次元方向での拡がりを考えると、油膜が十分に薄くなれば二つの力は釣り合うので、

$$l\tau_{xz}^o|_{x=0}=s \quad (1)$$

ここで解析を簡単にするため次のような仮定を行い $\tau_{xz}^o|_{x=0}$ を近似的に求める。すなわち油膜の移動速度を一定と仮定し、Fig. 1 に示すように厚さ h の薄い油膜が一定速度 U で動く場合の粘性抵抗について考える。油膜の動きによって生じる水側の境界層の厚さを δ とする。このとき長さ l の油膜を上げようとする力は単位質量あたり $s/\rho l h$ となるので、運動方程式は次式で与えら

[†] 〒700 岡山市津島 3-1-1

* (株)大塚製薬工場

Table 1 Physical properties of experimental oil-water systems

Oil	ρ_o [g/cm ³]	μ_o [c.P.]	σ_w [dyne/cm]	σ_o [dyne/cm]	σ_{ow} [dyne/cm]	s [dyne/cm]	Working temperature [°C]
<i>n</i> -Hexane	0.659	0.33	72.5	18.5	50.5	3.5	21.0
<i>n</i> -Heptane	0.677	0.41	71.5	20.0	49.0	2.5	27.2
Kerosene	0.793	1.33	72.5	26.0	30.1	16.4	20.0
Standard viscosity sample*	0.845	4.0	71.3	28.5	15.8	27.0	26.5
Gas oil	0.825	3.8	71.2	38.2	39.6	3.4	22
Mixture of kerosene and liquid paraffin	0.843	12.9	72.5	28.5	31.7	12.2	22
Olive oil	0.913	86.3	72.5	33.0	30.1	9.5	20
Fuel oil	0.927	146.3	73.2	31.1	31.1	11.0	11.5
Castor oil	0.960	1,127	72.5	36.0	21.1	15.4	20.5

* Standard fluid (hydrocarbon) for calibration of viscometer (manufactured by Showa Oil Co., Ltd.)

れる。

$$\frac{d^2 v_z}{dx^2} = -\frac{s}{\mu l h} \quad (2)$$

これを次の境界条件

$$\begin{aligned} x=h \text{ で } v_z^o &= U \\ x=-\delta \text{ で } v_z^w &= 0 \\ x=0 \text{ で } v_z^o &= v_z^w \\ x=0 \text{ で } \tau_{xz}^o &= \tau_{xz}^w \end{aligned}$$

で解くと油水界面でのせん断応力が次式で与えられる。

$$\tau_{xz}^o|_{x=0} = \frac{1}{1+\alpha\mu'} \left\{ \frac{\mu_w U}{\delta} - \frac{s}{2\alpha l} + \frac{\alpha\mu' s}{2l} \right\} \quad (3)$$

ただし

$$\alpha = h/\delta \quad (4)$$

$$\mu' = \mu_w/\mu_o \quad (5)$$

また水側の境界層厚さ δ は平板が移動するときの境界層厚さに補正係数 κ をかけた形で表されると仮定すると

$$\delta = 2\kappa\sqrt{2\mu_w l/\rho_w} \quad (6)$$

以上のように近似的に求めた $\tau_{xz}^o|_{x=0}$ および Eq. (6) を Eq. (1) に代入し整理すると、

$$\frac{dl}{dt} = 2\sqrt{2} \left(1 + \frac{1}{2\alpha} + \frac{\alpha\mu'}{2} \right) \frac{\kappa\sqrt{l}}{\sqrt{\rho_w\mu_w}} \frac{s}{l} \quad (7)$$

これを $t=0$ で $l=0$ の初期条件で解くと次式を得る。

$$l = 1.94\sqrt{\kappa} \left(1 + \frac{1}{2\alpha} + \frac{\alpha\mu'}{2} \right)^{1/2} \left(\frac{s^2 t^3}{\rho_w\mu_w} \right)^{1/4} \quad (8)$$

ここで式中の α と κ は実験値から求めねばならない。

なお上式は次の Hoult の相関式³⁾に粘度比による補正項が付加されたものである。

$$l = 1.33(s^2 t^3/\rho_w\mu_w)^{1/4} \quad (9)$$

2. 実験装置と実験方法

実験装置本体は Fig. 2 に示すような長さ、200 cm、幅 20 cm、高さ 12 cm のアクリル製水槽である。水槽左端の油だめ③の寸法は外壁基準で長さ 6 cm、幅 18 cm、高さ 7 cm (内壁基準で 5.4×17.4 cm) である。

実験手順としてはまず水槽を洗剤で洗った後十分に水道水を流し水面を清浄にし、その後約 30 分間放置して

Fig. 1 Schematic diagram of oil slick on water and coordinate system

① Rectangular channel ③ Dam
② Weir ④ Spreading oil

Fig. 2 Experimental apparatus

槽内の水を静止させた。次に所定量の油を入れた油だめを静かに引き上げて油を拡がらせた。油膜の拡がり速度は定位置を油膜先端が通過するとき信号をペン書きオシログラフに送りその時刻を計測して求めた。なお油膜先端の確認を容易にするため少量のタルク粉末をあらかじめ水面に散布した。このタルク粉末の油膜先端への吸着による拡がり速度の変化が無視できることはあらかじめ確かめた。

使用した油は、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、灯油、標準粘度液 (昭和石油製 JS5)、軽油、灯油と流動パラフィンの混合油、オリーブ油、B 重油およびヒマシ油の 9 種類で、Table 1 にその物性値を示す。これらの油は水道水と同じ温度にして使用した。また表面張力および界面張力はウィルヘルミイ式表面張力計 (島津 ST-1 型)、粘度はキャノンフェンスケ型毛管粘度計で測定した。

流出油量は表面張力が支配的となる範囲では単位水路

Fig. 3 Spreading rate for the small spreading volume

幅あたり 0.3ml/cm の一定値にして実験を行い、重力の影響が無視できない範囲では 23 ml/cm まで変化させた。

さらに水槽側壁の抵抗の影響を調べるために水槽幅を 7, 14, 20 cm の 3 種類に変化させて予備実験を行った結果、測定誤差の範囲内では油膜の拡がり速度は水槽幅には依存しないことが確かめられた。また側壁のごく近くを除いては油膜先端は進行方向に対して直角になることが確かめられた。

3. 実験結果と考察

3・1 表面張力-粘性力支配域

まずはじめに単位水路幅あたりの油量 V を 0.3 ml/cm にして種々の油を拡がらせ油膜長さ l と時間 t との関係を得た。このとき拡がり速度に最も大きく影響を及ぼすのは拡がり係数である。

Fig. 3 はこのようにして得た実験値を $l/(\mu_w^2/\rho_w s)$ 対 $t/(\mu_w^3/\rho_w s^2)$ の対数点綴で示したもので、図中の直線は Eq. (9) を示す。図からも明らかなように油膜側の粘性抵抗を考慮していない Eq. (9) はこれらの実験値のほぼ平均値を示しているが、全実験値を相関するには不適當であろう。すなわち点綴点はほぼ油の粘度の順にならび、最も粘度の高いヒマシ油と最も粘度の低い n -ヘキサンとでは無次元長さの値で 2 倍以上の差がある。さて Eq. (8) を書き換えると、

$$l/(s^2 t^3 / \rho_w \mu_w)^{1/4} = 1.94 \sqrt{\kappa} \{1 + (1/2\alpha) + (\alpha \mu'/2)\}^{1/2} \quad (10)$$

Fig. 4 は実験値から得た左辺の値を $\mu' (= \mu_w/\mu_o)$ に対して示したもので、図中の実線は $\alpha=2.0$, $\sqrt{\kappa}=0.54$ としたときの右辺の計算値である。この α, κ を Eq. (8) に代入すると次式を得る。

Fig. 4 Effect of oil viscosity on spreading rate

$$l = 1.05(1.25 + \mu')^{1/2} (s^2 t^3 / \rho_w \mu_w)^{1/4} \quad (11)$$

Fig. 5 は Fig. 3 に示した実験値を Eq. (11) に従って示したもので、図中の実線は Eq. (11) を示す。図からも明らかなように表面張力が支配的となる領域での油膜の拡がり速度は物性値が広範囲に変化した場合でも Eq. (11) により良好に相関できる。

3・2 重力-表面張力-粘性力支配域

流出油量が増加すると重力の影響が無視できなくなり、拡がり速度は油量の影響を受ける。しかしこの影響の度合は油の物性特に拡がり係数によって異なってくる。Fig. 6 にヒマシ油および軽油の場合の油量の影響を示す。ヒマシ油 ($s = 15.4$ dyne/cm) の場合は油量が 10 ml/cm まで増加しても油膜長さはわずかに大きくなるにすぎず、その傾きもほとんど変化しない。一方、軽油 ($s = 3.4$ dyne/cm) の場合は油量の増加により油膜長さが増大するのみならずその傾きも変化する。すなわち軽油の場合は V が 3.75 ml/cm で重力-粘性力支配域、また 10 ml/cm では重力-慣性力支配域になっていると見受けられる。このように拡がり係数の小さな油を用いれば比較的少量の油で広範囲な領域の実験を行うことが可能になる。

さて、上述のように拡がり係数が比較的大きなときは l と t との関係からは表面張力-粘性力支配域であるにもかかわらず拡がり速度は油量すなわち重力の影響を受けることになる。このような状態は先に述べた油の拡がりを三つの領域に分ける Fay¹⁾ らの考え方ではうまく説明できない。これは s の大きな油では油層先端での拡がり速度が早いので先端のみが薄い膜を形成し表面張力が支配的になるためであろう。すなわち油層が十分に厚みのある部分と先端の薄い油膜部分とから成るためである。事実 s の大きなときは油層中にこのような境界があることが観察された。

Fig. 7 に上述のように重力と表面張力および粘性力の三つが作用するときの実験値を無次元油膜長さ l/D 対無次元時間 t/T の点綴で示す。ここで D, T は Huh ら⁸⁾

Fig. 5 Correlation of spreading rate for the small spreading volume. Solid line shows Eq. (11).

Fig. 6 Effect of spreading volume on slick length of castor oil and gas oil

Fig. 7 Comparison of Huh's numerical solution⁵⁾ with experimental spreading rates for the moderate spreading volume for which the gravity and surface tension are simultaneous driving force in spreading

がこのような三つの力が作用する条件下での油膜の拡がりを解析したときに用いている特性量で、それぞれ次のように定義される。

$$D = 5\bar{V}/4\sqrt{2s/\rho_o(1-\rho_o/\rho_w)g} \quad (12)$$

および

$$T = [8.3\rho_o(1-\rho_o/\rho_w)g\bar{V}^2\sqrt{\rho_w\mu_w/16s^2}]^{2/3} \quad (13)$$

図中の実線は Huh ら⁵⁾の数値解を示しており、傾向的には実験値とよく一致している。しかしながら実験値は Fig. 4 の場合と同様に油の粘度の順にならび、重力

の影響を受ける場合でも油層内の粘性抵抗が無視できないことが明らかである。なお Huh らは理論値が彼らの実験値よりいくぶん大きいことから油量の影響を理論では大きく見積もりすぎていると述べているが、彼らを使用した油は粘度が高いこと (10 センチストークス以上) を考えればこの差は油側の粘性抵抗によるものであろう。

そこで前節と同様な方法で油の粘度による補正を行った結果を Fig. 8 に示す。図から明らかなように重力が

Fig. 8 Correlation of spreading rates for moderate spreading volume. Solid line shows Eq. (14).

影響を及ぼす領域での油膜長さは図中に実線で示した次の実験式で相関できる。

$$l/D = 1.19(1.25 + \mu')^{1/2} (t/T)^{0.7} \quad (14)$$

なお本実験式の適用範囲は $1 < (t/T) < 200$ である。

結 言

静止水面上での1次元方向への油膜の拡がり速度に関して、油の拡がり係数、粘度を広範囲に変化させて実験的な検討を行い次の結果を得た。

1) 表面張力-粘性力支配域での油膜の拡がり速度は油の粘度により変化することが明らかになった。特に油の粘度が水の5倍以下ではその影響は無視できなくなり、油膜長さと時間の関係は Eq. (11) で相関できる。

2) 油量が増加したときの油膜の挙動は拡がり係数によって異なり、拡がり係数が小さい油を用いれば比較的少量の油で広範囲の実験が可能となることが明らかにされた。

3) 油量が増加すれば重力の影響を受けはじめるが、この場合重力、表面張力、粘性力の三つが作用する状態が観察された。このような条件下でも油膜の拡がり速度は油の粘度の影響を受け、油膜長さは Eq. (14) で相関できる。

Nomenclature

D	= characteristic length defined by Eq. (12)	[cm]
g	= gravitational acceleration	[cm/sec ²]
h	= thickness of oil slick	[cm]
l	= slick length	[cm]
s	= spreading coefficient	[dyne/cm]
T	= characteristic time defined by	

Eq. (13)

t	= time	[sec]
V	= volume of oil per unit width of channel	[cm ²]
v_z	= horizontal velocity	[cm/sec]
x	= vertical coordinate	[cm]
z	= horizontal coordinate	[cm]

α	= thickness ratio of oil slick to boundary layer = h/δ	[—]
δ	= thickness of boundary layer	[cm]
μ	= viscosity	[g/cm·sec]
μ'	= viscosity ratio of water to oil = μ_w/μ_o	[—]
ρ	= density	[g/cm ³]
σ	= surface or interfacial tension	[dyne/cm]
τ	= shear stress	[dyne/cm ²]

<Subscripts>

o	= refers to oil
w	= refers to water
ow	= refers to oil-water interface

Literature cited

- 1) Fay, J. A.: "Oil on the Sea (edited by D.P. Hoult)", p. 53, Plenum Press, New York (1969)
- 2) Fannelop, T. K. and G. D. Waldman: *AIAA Paper*, No. 71-14 (1971)
- 3) Hoult, D. P.: *In. Ann. Rev. Fluid Mech.*, 4, 341 (1972)
- 4) Tsuda, S. (editor): "Seto-Naikai no Abura Osen (Oil Pollution in Japan Inland Sea)", p. 89 Dai-Nihon Tosho, Tokyo (1976)
- 5) Huh, C., M. Inoue and S. G. Mason: *Canadian J. of Chem. Eng.*, 53, 367 (1975)
- 6) Unno, H. and I. Inoue: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 2, 360 (1976)
- 7) Unno, H. and I. Inoue: *J. Chem. Eng. Japan*, 11, 13 (1978)

(1979年1月31日受理; 化学工学協会第11回秋季大会(東京, 1977年10月)にて発表)

Spreading of Oil Slicks on the Calm Water Surface

—Effect of viscous force in oil slick on spreading rate—

Teruo Takahashi, Yoshiro Kitamura and Kenzo Nakada*

Dept. of Ind. Chem., Okayama Univ., Okayama 700

The uni-directional spreading rate of oil slicks on the calm water surface was experimentally studied. The use of oils of low spreading coefficient suggests that the behavior of oil slicks in the wide range can be examined by the apparatus of relatively small scale. As it is difficult to reduce the spreading coefficient with holding of oils at sufficiently high viscosity, the effect of the viscous force in oil slicks on the spreading rates must be predicted prior to use of oils of low spreading coefficient.

In the surface tension regime of spreading, the dependence of spreading rates on viscosity of oils was observed for the case that the oils were less viscous than five times of water viscosity. In the regime in which the gravity and the surface tension are simultaneously the dominant force in spreading, the same effect of oil viscosity was observed. The spreading rates in both regime are correlated by empirical equations which contain a correction factor for the viscous force in oil slick.

* Otsuka Pharmaceutical Factory Co., Ltd.