

論 文

充填層による絶縁性液体炭化水素の
フィルタ内流動帶電の模擬実験

緒方 純俊*, 近野 隆亨***, 高尾 雄二**

(1982年2月23日受理)

Simulating Experiment of Electrification of Liquid Hydrocarbones
in Packed Beds as Filter

S. OGATA,* T. CHIKANO*** and Y. TAKAO**

(Received February 23, 1982)

A simulating experiment has been carried out over wide range of experimental conditions and system parameters. The copper tubes used here have the same length-to-diameter ratio of 10. Fine copper balls of 0.59 mm in diameter and glass beads from 0.28 to 1.34 mm in diameter were packed in these tubes. In addition, 550 mm long stainless steel capillaries with different inside diameter from 1.4 to 2.7 mm were also used for comparison. Commercial kerosine and gasoline were used as working fluids. Their electric conductivity ranged from 1.2×10^{-11} to 1.9×10^{-10} S/m for kerosine and 4.9×10^{-11} to 8.8×10^{-11} S/m for gasoline, respectively. The following findings have been obtained: (1) the streaming current in the copper tubes packed with fine copper balls is the three order of magnitude higher than that of capillaries and increases linearly with flow velocity. Insignificant difference has been observed between kerosine and gasoline. (2) the magnitude of charge density of the copper tubes packed with glass beads is independent of tube size, while it shows dependency on bead size and increases with decreasing bead size. The current or charge density could reasonably be correlated to a non-dimensional parameter defined as a ratio of relaxation length to a hydraulic radius. All the data fell on the single line in the range from 10 to 10^3 of the nondimensional parameter. These results imply that the simulating experiment can be employed substantially and more frequently.

1. 緒 言

金属パイプあるいはフィルタ内を流れる絶縁性液体炭化水素の帶電現象は近年とくに安全工学的観点から関心がもたれている¹⁻⁷⁾. 流動帶電によって燃料タンク内に

蓄積された電荷は、これまでしばしば大きな爆発の災害をもたらした. 過去 20 年以上にわたる災害防止の努力にもかかわらず、まだ完全な防止技術が確立されていないのは、帶電と電荷の移動についての機構がまだ十分に解明されていないからである.

直管内の帶電機構は比較的よく理解されていて、既往の実験式から概略の安全指針を立てることは可能とされている. しかしそまだ一般性を有する結果は得られていない. 他方、曲管内の帶電は、これまで研究例が少なく、帶電电流とシステムパラメータ、操作条件等の間に系統立った関係が得られていないのが実情である.

液体炭化水素を取り扱う工業において、一つのプロセスから他のプロセスに油類が輸送される場合、パイプ類およびポンプのほかに、通常フィルタあるいはセパレータ類がいくつか配置されている. ここでの帶電はパイプのそれに比べて 100 倍とも 1,000 倍ともいわれている¹⁾. したがってフィルタを通して蓄えられた受器内での帶電

*,** 九州大学工学部化学機械工学科 (812 福岡市東区箱崎 6-10-1)

Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Kyushu University, 10-1, Hakozaki 6-chome, Higashi-ku, Fukuoka, 812 Japan

* 現在: 大分大学工学部海洋生産工学センター (870-11 大分市旦野原 700)

Present address: Laboratory of Marine Science, Faculty of Engineering, Oita University, 700, Dannoharu, Oita, 870-11 Japan

*** 千代田化工建設株式会社 (230 横浜市鶴見区鶴見中央 2-12-1)

Chiyoda Chemical Engineering & Construction Co., Ltd., 12-1, Tsurumi-chuo 2-chome, Tsurumi-ku, Yokohama, 230 Japan

電荷は著しく大きくなり、それだけ着火・爆発の危険性が大きくなる。フィルタ内での帶電は曲管部およびバルブにおける帶電と同様、研究は端緒についたばかりであり、定量的知見はまだほとんど得られていない。

フィルタ内での帶電の研究を困難にしている大きな理由の一つは、システムパラメータの定義そのものがむずかしいことである⁶⁾。パイプ径に相当するフィルタ孔径の定義一つを例にとってみてもその任意性の大きいことがわかるであろう。また、フィルタ内の液の流路を予測することはきわめて困難な操作である。これらのあいまいさは研究者相互のデータを比較するさいに大きな障害となっている。このほか、フィルタ材質の違い、フィルタ厚み、劣化等も帶電に大きな影響を及ぼすことが報告されている¹⁾。極端な場合には、同じフィルタを用いても著しい個体差が認められたといわれている¹⁾。一方、充填物の詰まった金属パイプによる模擬実験では充填層内の平均的流路径、空隙率、油と粒子の接触総面積および流路のねじれ、すなわち屈曲係数の予測が容易である。また理論との対応がつけやすいという利点がある。

以上述べた事実を考慮して、本研究ではフィルタの代りに金属球およびガラスビーズの詰まった金属パイプによる模擬実験を試みた。なお、本実験はフィルタにおける帶電現象を模擬するだけでなく、化学装置として広く用いられている充填塔内での帶電をも予測しようとするものである。たとえば、石油の脱硫に用いられている並流触媒充填塔では、1 m/s の高速で吹き込まれる水素ガスの大きな剪断力をうけて炭化水素が層内を通過する^{*1}。これまで災害の報告例は見当たらないが危険量の電荷が層内で発生しているものと考えられる。

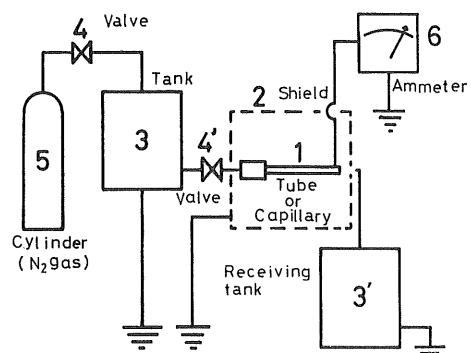


図 1 流動電流測定系の概略図

Fig. 1 Outline of streaming current measuring system.

*1 液体の線速度は数 mm/s オーダで非常に小さいが、ガス流による大きな剪断をうけている。

表 1 細管および銅チューブの寸法

Table 1 Dimensions of capillaries and tubes.

Test section	Material	D(mm)	L(mm)
Capillary	1	Stainless steel	2.7
	2		2.4
	3		1.4
Tube	1	Copper	19.0
	2		10.0

2. 実験装置および流動電流測定法

2.1 ステンレス細管および充填銅チューブによる実験

実験装置の概略を図 1 に示す。テストセクションは銅製金網で静電遮蔽された 2 の部分で、ここに表 1 に示す 3 種類のステンレス細管と 2 種類の銅チューブが取り付けられる。油タンク 3 に蓄えられた試料油は高圧窒素ガスによってパイプ内に送入される。なお試料油のもつ初期電荷を完全にゼロにするために、タンクに充填した後、実験に先立って 24 時間放置した。油の流量はバルブ 4 および 4' によって調節される。系外に排出された油は右下の受器 3' に受け止められる。汚染物質の混入によって油の導電率が変化することを避けるために、一度使用した油はすべて廃棄した。細管またはチューブからの接地電流をピコアンペーメーター 6 によって測定し、この符号を逆にして実際の流動電流とした。この際、電荷収支がとれていることを次のようにして確認した。すなわち、排出された油を一定量ファラディー・カップに受け止め、この電荷を圧送時間で除したものと接地電流とを比較した。この結果、良好な収支の一致が得られた。

表 1 に示したステンレス製細管による測定は充填チューブとの比較の基準として準備されただけでなく、既往の結果とのトレースを兼ねて行なった。

2 種類の銅チューブの幾何学的形状を相似に保つために、内径と長さの比を 10 に合わせた。銅チューブに詰められた充填物の特性を表 2 に示す。銅球は幾何平均径 D_p 0.59 mm (0.5–0.7 mm) にふるい分けられたものを用い、管内の空隙率 ϵ は 0.31 であった。表 2 におけるガラスビーズの特性値も銅球の場合と同様である。銅チューブの詳細図を図 2 に示す。管の両端には充填物を支える真鍮製の金網を取り付けた。

2.2 ステンレス製充填塔による実験

塔の寸法が大きい（内径 42 mm、高さ 105 mm）ので、ここではポンプを用いて油を循環させた（図 8 参照）。このとき油はポンプやパイプ内で帶電するので、

表 2 銅球およびガラスビーズの特性

Table 2 Physical properties of copper balls and glass beads.

Particle	D_p (mm)	ρ (g/cm ³)	ϵ (-)	$m' (= \epsilon D_p / (1 - \epsilon))$
Glass beads	1.34	2.50	0.36	0.76
	0.59		0.30	0.26
	0.28		0.26	0.10
Copper balls	0.59	8.93	0.31	0.27

表 3 試料絶縁油の特性

Table 3 Physical properties of nonconducting working fluids.

Liquid	ρ (g/cm ³)	μ (cP)	κ (S/m)
Kerosine	0.79	1.5	$1.2 \times 10^{-11} \sim 1.9 \times 10^{-10}$
Gasoline	0.72	0.46	$4.9 \times 10^{-11} \sim 8.8 \times 10^{-11}$

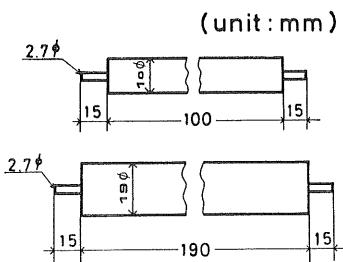


図 2 銅チューブの詳細図

Fig. 2 Detailed schematics of copper tubes.

塔に入る前に油の電荷を完全に取り除いておく必要がある^{7,8)}。充填塔の直下に内径 67 mm、高さ 400 mm のステンレス製の緩和塔を設けた。本実験で使用した灯油(表 3 参照)の緩和時間は最高 2 s、一方、緩和塔内の最大流速は 1.5 cm/s、したがって緩和塔内の最小滞留時間は 26 s であるから、液があらかじめもっていた電荷は緩和塔内でほぼ完全に消滅すると考えられる。しかし油は緩和塔内でわずかながら帯電するので、粒子を充填したときの充填塔接地電流 I_1 から空塔時の接地電流 I_2 を引いたものを充填塔における流動電流 I と定義した^{*2}。

3. 測定結果および考察

3.1 ステンレス細管による測定概観

金属細管内の帶電電流 I は管長 L の関数であることが

知られていて、無限長管の場合の電流 I_∞ は Koszman⁹⁾ その他のによっていくつかの実験式が提案されている。直管の場合の I_∞ と液流速 v との関係は概略次式で整理される¹⁰⁾。

$$I \propto v^{1.88 \sim 2.4} \quad (1)$$

本実験で用いた細管の長さはいずれも 550 mm で、比較的短い。したがって管内における速度境界層およびイオン濃度境界層のいずれも助走区間にあると考えられる。いま流れが層流であると考え、速度助走距離を X 、濃度助走距離、すなわち緩和長さを X' 、管の内径を D で表わすと、これらの間の関係はレイノルズ数 Re の関数として次式のように記述することができる^{2,10)}。

$$X/D = 0.065 Re \quad (2)$$

$$X'/D = \tau (\mu / D^2 \rho) Re \quad (3)$$

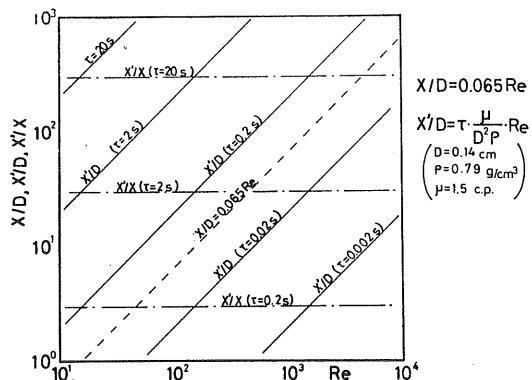


図 3 規格化された速度および濃度助走距離

Fig. 3 Normalized distances needed for fully developed velocity and concentration.

*2 銅チューブの場合には、空塔時の電流は充填時のそれに比べて非常に小さい(5% 以下)ので、この必要はない。

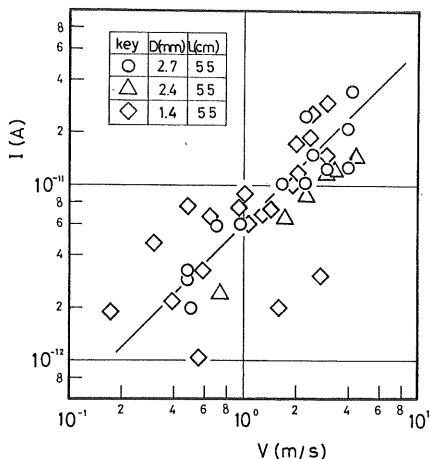


図 4 ステンレス細管における流動電流と流速との関係
Fig. 4 Relation between streaming current and velocity for stainless steel capillaries.

ここで τ , μ , ρ はそれぞれ液の電荷緩和時間、粘度および密度である。(2)式より計算した層流の最大助走距離は $D=2.7\text{ mm}$ の管に対して 404 mm となり、本実験における管長と同オーダである。ここで実際の Re 範囲は $280\sim7,200$ であるから、測定の大半は速度助走区間でのデータである。

図 3に緩和時間をパラメータとして、 X および X' と Re の関係を示す。本実験における試料油の τ は約 2 s であるから、図 3より緩和長さ X' は速度助走距離 X よりも 1 桁大きい。すなわち本実験では速度境界層、濃度境界層のいずれも発達段階にあることを示している。

図 4に灯油を用いた場合の接地電流の絶対値 I と流速 v の関係を示す。最大管径 $D=2.7\text{ mm}$ のデータを除けばデータのばらつきが大きく、 I の v に対する依存性は判然としない。しかしすべてのデータを包括すると、本実験範囲では概略 $I \propto v$ とみなすことができる。これは Rutgers ら¹⁾が得た結果と同じ傾向を示している。また後述するように(図 6 参照)、電荷の体積密度 q は数 $\mu\text{C}/\text{m}^3$ で、既往の研究とオーダ的には一致している¹⁾。

3.2 充填チューブにおける帶電電流

図 5に管径 10 mm の充填チューブにおける電流 I と平均透過液流速 $\bar{v}(v/\varepsilon)$ の関係を示す。ここで ε は銅球の空隙率で 0.31 である。比較のために、同時に細管のデータもプロットしている。このとき、灯油の接地電流は常に正、ガソリンのそれは常に負であった。ここでも概略 $I \propto \bar{v}$ なる関係が得られている。Gavis ら³⁾は導電率 κ の低い液体($\kappa=10^{-13}\sim10^{-12}\text{ S/m}$)に対して、 $I \propto \bar{v}^{1.75}$ を得ている。本実験における流速範囲は Gavis らのそれとだいたい同じであるが、 κ のオーダは約 1 桁大きい。

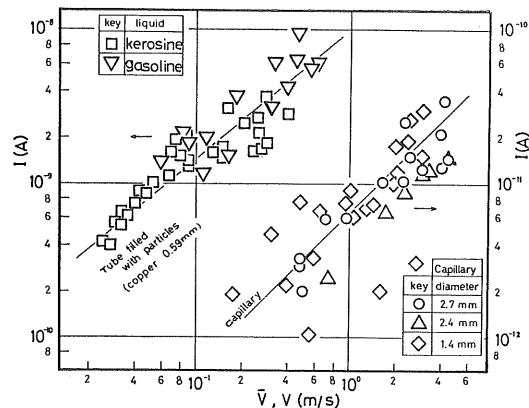


図 5 銅球充填の銅チューブにおける流動電流と流速との関係(細管のデータも比較のために記入してある)
Fig. 5 Relation between streaming current and velocity for copper tube packed with copper balls. (Data for capillaries were drawn together for comparison.)

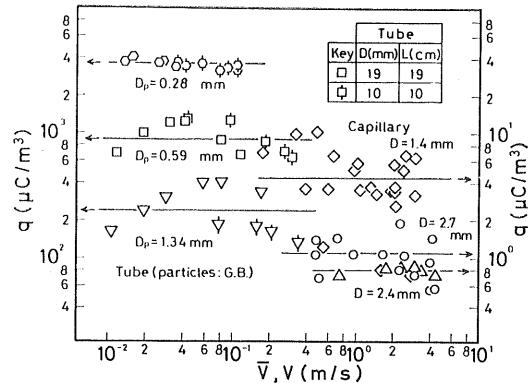


図 6 サイズの異なるガラスビーズで充填された銅チューブにおける電荷密度と流速の関係(細管のデータも比較のために記入してある)
Fig. 6 Relation between charge density and velocity for copper tubes packed with glass beads of various sizes. (Data for capillaries were also plotted for comparison.)

の指数はかなり小さくなっている。これはフィルタと充填層との実際の構造の違いに起因するものであろう。図 5において、同じ流速で比較すると、充填チューブの I は細管のそれよりも 3 桁大きい。この事実はフィルタ内での帶電を想起させるものである。またこのことは化学工業で用いられている実プラントの充填層、流動層でもかなり大きな帶電電流を生じていることを予想させるものである。

つぎに同じ銅チューブにガラスビーズを充填して測定を行なった結果を図 6 に示す。充填物の材料による差は

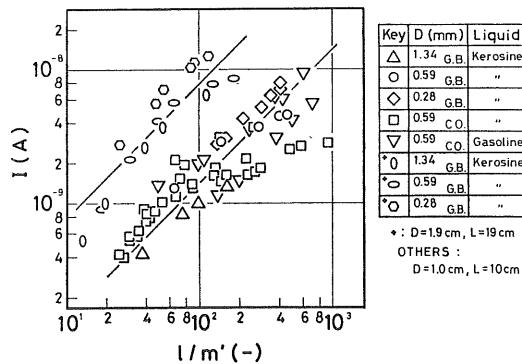


図 7 管径、球径および球の材質の異なる充填チューブの流動電流と無次元パラメータ l/m' との関係

Fig. 7 Relation between streaming current and nondimensional parameter l/m' for different tube sizes, ball sizes, and ball materials.

灯油およびガソリンのいずれにおいても認められなかつた。ここで、縦軸はチューブの管径の差を消去するため電荷密度 q で表わしている。ガラスピーズのゼロ湿度における見掛け導電率は 10^{-10} S/m のオーダで¹¹⁾、灯油およびガソリンのそれよりも 1 衡大きいために、材料物質の差が現われなかつたものと考えられる。またチューブの径の影響もほとんど認められない。しかし、ガラスピーズの径の影響は明瞭に現われ、径が小さいほど大きな q が得られている。これは液と粒子表面との接触面積が大きいほど大きな帶電電流を生じることを示すもので、既往のフィルタにおける帶電の結果と同じ傾向を示している⁶⁾。

図 7 に二つの銅チューブによるすべてのデータを I と l/m' の関係として再整理した。ここで l は緩和長さ ($\tau \cdot d$)、 m' は仮想的な流路の直径 $\varepsilon D_p / (1 - \varepsilon)$ である^{12) *3}。 I は充填粒子の材質および粒径によらず l/m' に比例する⁴⁾。

本実験範囲では、充填チューブの流動電流は緩和長と流路径の比によって一意的に表わされることが明らかにされた。いま、ここでの主要な装置パラメータである D_p と主要な操作パラメータである d (ε は必ずしも D_p によって変化しないので d をとる必要はない) のみが変化する場合を考える。このとき、 d の増加は充填球付近

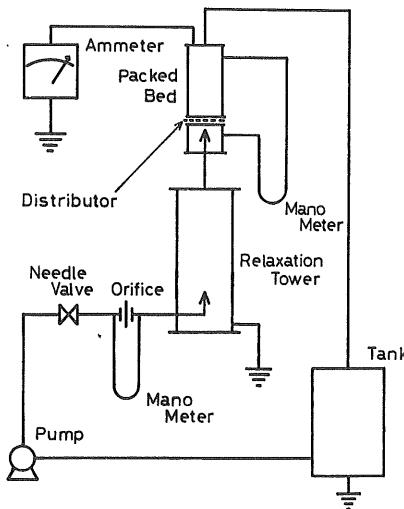


図 8 充填塔の流動電流測定系の概略図

Fig. 8 Schematics of streaming current measuring system for packed bed.

の剪断場に直接影響を与える、速度および濃度両境界層の厚みを薄くするはずである。一方、 D_p の増加は平均的流路径を広げることになるので、これらの境界層厚さを増大させることになる。図 7 は d と D_p の変化がもたらす効果は互いに打ち消し合うことを示している。すなわち、液の帶電は充填球表面近傍の流動模様あるいは剪断によって支配されることを示している。このことは細管による実験結果からも容易に理解されることで、両者の帶電機構の類似性を示すものであろう。

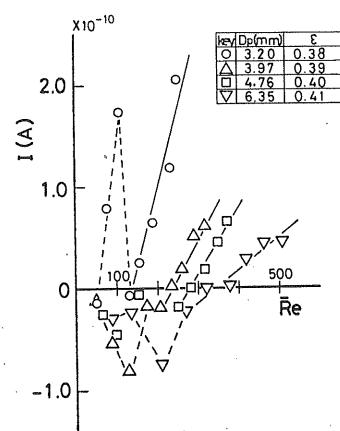


図 9 球径の異なる充填層における流動電流とレイノルズ数との関係

Fig. 9 Relation between streaming current and Reynolds number in packed bed for various ball sizes.

*3 $\varepsilon D_p / 6(1 - \varepsilon)$ をとする場合もあるが、係数 6 を除いても物理的意味は変わらないので、ここでは除いた。

*4 入手可能な灯油とガソリンの導電率はいずれも 10^{-11} S/m のオーダであったので、 $l/m' > 10^3$ のデータをとることはできなかった。 $l/m' < 10$ のデータをとるために除電剤 ASA-3 を混合して導電率を上げ、測定を試みたが、同じ流速でも I が正負に変化して安定なデータをとることができなかつた。

表 4 充填球の特性

Table 4 Physical properties of ball packings.

Balls	D_p (mm)	ρ (g/cm ³)	ϵ (-)	$m'(\epsilon D_p/(1-\epsilon))$
Stainless steel 1	3.20	8.15	0.38	2.04
	3.97		0.39	2.60
	4.76		0.40	3.28
Steel	6.35	7.85	0.41	4.50

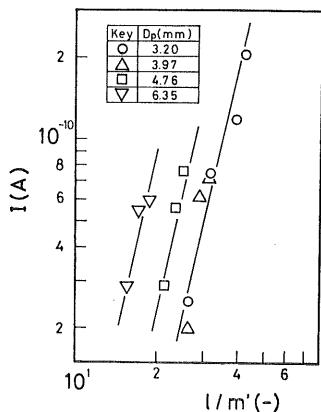
図 10 種々の球径の充填層における流動電流と無次元パラメータ l/m' との関係

Fig. 10 Relation between streaming current and nondimensional parameter l/m' in packed bed for various ball sizes.

3.3 充填塔における帶電電流

図 8 に実験系の配置図を示す。充填塔内には表 4 に示すステンレスおよび鋼球を分散板から高さ 10.5 cm まで充填した。分散板は真鍮製で、直径 2 mm の孔を多数空けたものを用いた。帶電電流の定義は 2.2 節で述べたとおりである。

図 9 に灯油の電流をレイノルズ数 \bar{Re} の関数として示した。ここでも \bar{Re} の代表長として $\epsilon D_p/(1-\epsilon)$ を、速度として $\bar{v}(v/\epsilon)$ を使用した。 \bar{Re} が小さいところでは I は負になる領域が存在するが、その原因は判然としない。 $300 \leq \bar{Re} \leq 500$ では、すべての球径 D_p に対して I は正となり、また D_p が小さいほど I は大きくなる。

さらに充填チューブのデータとの関連を確かめるために I を l/m' の関数として表示することを試みた。図 10 にその結果を示す。充填チューブの場合と違って D_p の影響が明瞭に現われた。 $15 \leq l/m' \leq 40$ では $I \propto (l/m')^4$ なる関係が得られている。しかし I の絶対値は金属細管のそれと同オーダである。同じ l/m' で比較すると D_p が大きいほど I は大きくなる。

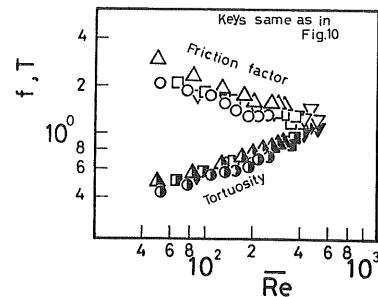


図 11 レイノルズ数に対する摩擦係数と屈曲係数の変化

Fig. 11 Variations of friction factor and tortuosity with Reynolds number for various ball sizes.

これらの事実は充填チューブの結果と著しく異なっている。充填チューブの粒径-管径比は 7.5~67.9、一方、充填塔のそれは 6.6~13.2 で、オーダは同じである。したがって、管壁付近の流動模様は相似と考えられ、両者の帶電機構に大きな差異をもたらすようには見えない。一方、 m' に注目すると、充填チューブでは 0.10~0.76、充填塔では 2.0~4.5 である。結局、充填塔では流路径が 1 桁大きいために充填球表面における液の剪断模様が変化すると考えられる。しかし現段階では剪断場の模様と帶電機構との関係を明らかにすることはできない。

参考までに、このときの摩擦係数 f と屈曲係数 T を \bar{Re} の関数として図 11 に示した。ここで f および T は^{3,10)}

$$f = \{\epsilon^3/(1-\epsilon)\} (D_p/2L) (\Delta P g_c / \rho v^2) \quad (4)$$

$$T = (\epsilon m'^2 / 32K)^{1/2} = [\epsilon^3 D_p^2 / 32K(1-\epsilon)^2]^{1/2} \quad (5)$$

ただし K は透過係数で、塔の圧損 ΔP および液流量 Q を実測して次式で計算される。

$$K = Q\mu / \{(A\bar{P}/L)\epsilon A\} = \bar{v}\mu / (A\bar{P}/L) \quad (6)$$

ここで L は塔高、 A は塔断面積である。

4. 結 言

本研究ではフィルタによる絶縁油の帶電実験を行なう

基礎として充填チューブおよび充填塔による帶電電流の測定を行なった。使用した液の物性、とくに導電率の変化幅が小さく、また測定した流速範囲も非常に限られたものである。しかしながら充填チューブにおける帶電電流は金属細管の約 10^3 倍の値を示すことが明らかにされた。また、充填チューブおよび充填塔による実験から、充填球表面付近の流動状態が帶電に支配的影響を与えていることが定性的に明らかにされた。

これらの事実はフィルタ内の帶電現象を調べる基礎として、構造の簡単な充填物による模擬実験が有効な手段であることを示している。充填塔の構造、充填方法を変化させ、また、電気物性の異なる試料液を用いて一般性を有するデータをとることが今後の課題である。

本研究をまとめるに際して、名古屋大学工学部電気工学科上田実、北村尚武両先生から貴重な資料の提供をうけた。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 浅野和俊：静電気学会誌，2 (1978) 150
- 2) 浅野和俊：静電気学会誌，1 (1977) 58
- 3) J. Gavis and J.P. Wagner : Chem. Eng. Sci., 23 (1968) 381
- 4) P.W. Huber and A.N. Sonin : J. Colloid Interface Sci., 52 (1975) 415
- 5) 北村尚武、上田 実：高分子学会第21回静電気発表会講演要旨集, p. 29, 高分子学会 (1976)
- 6) 北村尚武、上田 実：静電気学会講演論文集 '81, p. 110, 静電気学会 (1981)
- 7) 北村尚武、上田 実：電気学会論文誌 B, 98 (1978) 571
- 8) 北村尚武、上田 実：静電気学会誌, 2 (1978) 258
- 9) I. Koszman and J. Gavis : Chem. Eng. Sci., 17 (1962) 1023
- 10) 亀井三郎編：化学機械の理論と計算、第2版、2.2節, p. 32, 産業図書 (1975)
- 11) 緒方純俊、田川克志、山田健二、藤野光雄、篠原 久：粉体工学会誌, 17 (1980) 620
- 12) 三輪茂雄：粉粒体工学、第11.2節, p. 316, 朝倉書店 (1972)