連続 X 線を用いた多孔質媒体内 3 相流体分布の定量化

渡辺琢也*,***・徳永朋祥*,****・栗林 勝**・小玉祐一**

Quantification of three-phase fluid distribution in a porous medium by measuring X-ray transmission intensity

Takuya WATANABE *,***, Tomochika TOKUNAGA *,****,
Masaru KURIBAYASHI ** and Yuichi KODAMA **

Abstract

A new X-ray transmission measurement with dispersion X-ray spectrometry was developed to quantify three-phase fluid distribution in a porous medium. The X-ray transmission intensities through a porous medium were measured with energy dispersion X-ray spectrometry, and the spatial distribution of each phase (water, oil, and air) fluid in the medium was quantified by using intensities at two appropriate frequency bands. The technique was applied to measure the spatially distributed three-phase fluid contents in two different porous media, and was proved to be able to quantify three-phase fluid distribution in porous media with sufficient accuracy. This paper suggested the possibility to quantify temporal change of three-dimensional distribution of three-phase fluids in a porous medium by integrating the energy dispersion X-ray spectrometry with traditional CT technique.

Key Words: porous medium, multiphase fluid, X-ray transmission, energy dispersion X-ray spectrometry, CT

要 旨

本研究では、多孔質媒体に連続 X 線を照射し、透過 X 線強度に対してエネルギー分散型計測を行うことにより、二次元多孔質媒体中に存在している 3 相（水・オイル・ガス）流体分布を定量化する手法を開発した。ここでは、特に、適切な 2 つのエネルギーにおける透過 X 線強度に着目すること

* 東京大学大学院工学系研究科地球システム工学専攻（
Department of Geosystem Engineering, Graduate School of Engineering, the University of Tokyo

** 株式会社 リガク
Rigaku Corporation

*** 現所属：経済産業省
Present address: Ministry of Economy, Trade and Industry

**** 現所属：東京大学大学院新領域創成科学研究科環境学専攻
Present address: Institute of Environmental Studies, Graduate School of Frontier Sciences, the University of Tokyo

で、精度良く媒体中の3相流体分布を求めることを可能にした。この手法を2つの多孔質媒体に適用し、その妥当性を確認した。次に、その成果に基づき、X線CT技術にエネルギー分散型計測を付加することで、多孔質媒体中の3相流体分布を三次元的に定量化できる可能性について検討した。その結果、エネルギー分散型計測を付加したX線CT計測により、定量化が可能となることが示唆された。

キーワード：多孔質媒体、多相流体、X線透過、エネルギー分散型計測、X線CT

1. はじめに

近年、石油系物質や有機塩素系物質などのNAPL (Non-Aqueous Phase Liquid) による土壤・地下水汚染が問題となっており、汚染物質を回収する効率的な手法を確立することが求められている(例えば、日本地盤環境浄化推進協議会、2002)。そのためには、土壤(多孔質媒体)中の多相流体挙動のメカニズムを知り、その上で汚染のシナリオ予測や効果的な汚染物質除去技術を検討する必要がある。土壤中の多相流体流れのメカニズムは複雑で、いまだ完全に解明されてはおらず、実験室レベルで多孔質媒体内の流体分布と挙動をリアルタイムに定量化することができれば、その物理現象を詳細に検討し、適切なモデルを構築することが可能となると考えられる。

そのための手法として、これまでに γ 線透過(Høst-Madsen and Høgh Jensen, 1992; Illangasekare et al., 1995; Oostrom and Dane, 2000等)、光透過(Van Geel and Sykes, 1994; Tidwell and Glass, 1994; Darnault et al., 2001等)、X線透過(Tidwell and Glass, 1994等)等を利用し、二次元多孔質媒体内の3相(水、NAPL、ガス)流体分布の定量化が試みられてきている(表1)が、それぞれ利点とともに不可避な欠点を有していた。

本研究では、新たに、エネルギー分散型計測器を用い、連続X線の透過強度を計測することにより、多孔質媒体内における3相流体の空間分布を定量化することを目的とした実験を行った。また、その結果に基づき、X線CT技術の改良によって、多孔質媒体中の3相流体分布を三次元的に定量化する手法の可能性について議論を行ったので、ここに報告する。

2. 定量化手法

2.1 多孔質媒体の間隙率の定量化手法

X線は物質を通過する過程で強度を減衰する。物質の厚さを x 、物質に入射するX線のエネルギー E における強度を $I_o(E)$ 、透過強度を $I(E)$ とする。このとき、 $I_o(E)$ と $I(E)$ の間には、X線減衰の指数関数則より、以下の式で表される関係があることが知られている(飯沼・館野, 2001)。

$$I(E) = I_o(E)e^{-\mu(E)x} \quad (1)$$

ここで、 $\mu(E)$ を線源弱係数(次元は L^{-1})という。 μ は各物質に固有の値であり、また、X線の持つエネルギーに依存した値である。

入射X線強度を $I_o(E)$ 、乾燥した多孔質媒体を透過したあとの強度を $I_s(E)$ とすると、 $I_o(E)$ と $I_s(E)$ の間には、式(1)より、以下の式が成り立つ。

$$-\ln(I_s(E)/I_o(E)) = \mu_s(E) \cdot (1-\phi)L \quad (2)$$

ここで $\mu_s(E)$ は多孔質媒体の固体部分の線減弱係数、 ϕ は間隙率、 L は多孔質媒体の厚さ、を表している。ここでは、多孔質媒体中に存在するガスを通過するときに生じるX線の減衰は非常に小さいので無視している。

この多孔質媒体の間隙を水で満たしたとき、入射強度 $I_o(E)$ と透過強度 $I_{ws}(E)$ の間には、以下の式が成り立つ。

$$-\ln(I_{ws}(E)/I_o(E)) = \mu_s(E) \cdot (1-\phi)L + \mu_w(E) \cdot \phi L \quad (3)$$

ここで、 $\mu_w(E)$ は水の線減弱係数を表している。式(2)、(3)より、間隙率は、以下の式により得られる。

$$\phi = \frac{-\ln(I_{ws}(E)/I_o(E))}{\mu_w(E)L} \quad (4)$$

表1 既存の研究の特徴と短所のまとめ

Table 1 Summary of the features and disadvantages of previous researches to quantify immiscible fluid distribution in two-dimensional porous media

	特徴	短所
複エネルギー γ線法 (例えば, Oostrom and Dane, 2000)	<ul style="list-style-type: none"> ● 2種類のエネルギーのγ線を透過させることで, 3相流体各相の分布を定量化できる. ● 厚い試料にも適用できる. 	<ul style="list-style-type: none"> ● 点計測である.
光透過法 (例えば, Darnault et al., 2001)	<ul style="list-style-type: none"> ● 色相と明度を用いて, 3相流体各相の分布を定量化できる. ● 2次元計測ができる. 	<ul style="list-style-type: none"> ● 半透明の試料にしか適用できない. ● 汎用性に欠ける. ● 考慮すべき物理現象が複雑.
X線透過法 (例えば, Tidwell and Glass, 1994)	<ul style="list-style-type: none"> ● 2次元計測ができる. 	<ul style="list-style-type: none"> ● 2相流体までしか定量化できない.

2.2 多孔質媒体中に2相流体が存在している場合の入射強度と透過強度の関係

多孔質媒体中に水、ガスが存在しているとき、入射強度 $I_0(E)$ と透過強度 $I_w(E)$ の間には、以下の式が成り立つ。

$$-\ln(I_w(E)/I_0(E)) = \mu_s(E) \cdot (1-\phi)L + \mu_w(E) \cdot \theta_w L \quad (5)$$

ここで、 θ_w は体積含水率を表している。乾燥した多孔質媒体の透過強度 $I_s(E)$ と水、ガスが存在している多孔質媒体の透過強度 $I_w(E)$ の間には、式(2)、(5)より、以下の式が成り立つ。

$$-\ln(I_w(E)/I_s(E)) = \mu_w(E) \cdot \theta_w L \quad (6)$$

次に、多孔質媒体中にNAPL、ガスが存在している場合について同様に考えると、乾燥した多孔質媒体の透過強度 $I_s(E)$ とNAPL、ガスが存在している多孔質媒体の透過強度 $I_n(E)$ の間には、以

下の式が成り立つ。

$$-\ln(I_n(E)/I_s(E)) = \mu_n(E) \cdot \theta_n L \quad (7)$$

ここで、 $\mu_n(E)$ はNAPLの線減弱係数、 θ_n は単位体積の多孔質媒体中に存在するNAPLの割合、を表している。

2.3 多孔質媒体中に3相流体が存在している場合の各相存在率の定量化手法

多孔質媒体中に水、NAPL、ガスが存在しているとき、入射強度 $I_0(E)$ と透過強度 $I(E)$ の間には、以下の式が成り立つ。

$$\begin{aligned}
 & -\ln(I(E)/I_0(E)) \\
 & = \mu_s(E) \cdot (1-\phi)L + \mu_w(E) \cdot \theta_w L + \mu_n(E) \cdot \theta_n L \quad (8)
 \end{aligned}$$

乾燥した多孔質媒体の透過強度 $I_s(E)$ と水、NAPL、ガスが存在している多孔質媒体の透過強

度 $I(E)$ の間には、式 (2)、(8) より、以下の式が成り立つ。

$$-\ln(I(E)/I_s(E)) = \mu_w(E) \cdot \theta_w L + \mu_n(E) \cdot \theta_n L \quad (9)$$

θ_w , θ_n を得るには、複数の式が必要であり、そのためには2つ以上のエネルギーにおいて I を計測することが求められる。

ここで、簡単のため、

$$m_E = -\ln(I(E)/I_s(E)) \quad (10)$$

とおく。このとき、2つのエネルギー E_1 , E_2 において、以下の式が成り立つ。

$$m_{E_1} = \mu_w(E_1) \cdot \theta_w L + \mu_n(E_1) \cdot \theta_n L \quad (11)$$

$$m_{E_2} = \mu_w(E_2) \cdot \theta_w L + \mu_n(E_2) \cdot \theta_n L \quad (12)$$

式 (11)、(12) より、以下のように θ_w , θ_n を得る。

$$\theta_w = \frac{1}{L} \frac{\mu_n(E_2)m_{E_1} - \mu_n(E_1)m_{E_2}}{\mu_w(E_1)\mu_n(E_2) - \mu_w(E_2)\mu_n(E_1)} \quad (13)$$

$$\theta_n = \frac{1}{L} \frac{-\mu_w(E_2)m_{E_1} + \mu_w(E_1)m_{E_2}}{\mu_w(E_1)\mu_n(E_2) - \mu_w(E_2)\mu_n(E_1)} \quad (14)$$

また、ガスの存在率 θ_g は以下の式により得られる。

$$\theta_g = \phi - \theta_w - \theta_n \quad (15)$$

3. 多孔質媒体内流体分布の定量化のための予備計測

3.1 計測器具

本研究では、連続X線の線源の設定を、ターゲット：タングステン、加速電圧：42kV、管電流：1.4mA、とした。計測器には、エネルギー分散型計測器であるシリコンドリフトディテクタ（（株）リガク製、カウント速度：500,000count/sec、エネルギー分解能：300eV）を使用した。エネルギー分散型計測器に連続X線が入射すると、それぞれのエネルギーにおける透過強度がカウントされ、離散的なエネルギーにおける強度の分布として計測される。従来のX線透過法においては、透過X線の全強度しか計測しなかったため、2.3節で述べているように、2つ以上のエネルギーに

おける透過強度を得ることができず、3相の流体分布を計測するには情報量が不足していた。しかし、このエネルギー分散型の計測を行うことで、飛躍的に情報量が増え（4096個）、3相の流体分布を計測できると考えられる。

本研究では、NAPLに対応する流体として、Ondinal15（昭和シェル石油（株）製）というオイルを用いた。水、オイルによるX線の吸収は少ないために、水またはオイルのみでは、計測データからそれらの量を高精度で求めることができない。そこで、水、オイルにそれぞれBaCl₂を重量で6.5%、C₇H₁₅Iを10%混ぜることにより、水相、オイル相の計測を可能にした。

3.2 計測値に対する処理

本研究で使用した計測器は、不可避な計測誤差を有しているために、計測結果はばらつく。このばらつきを緩和するために、計測値に対して、

$$\bar{G}_k = 0.25G_{k-1} + 0.50G_k + 0.25G_{k+1} \quad (16)$$

の式を適用し、平滑化を行うこととした。すなわち、ある点における値 G_k とその両隣の値に、重み0.25、0.50、0.25を与えて平均し、その平均値をその点における値 $\bar{G}_k$ とする。さらに、このようにして得られる重み平均 $\bar{G}_k$ の数列を、また式 (16) によって平均化する。このような平均化のサイクルを進めていくことにより、計測データの平滑化が進められる（大崎、1994）。

ここで、計測値に対して、何サイクルの移動平均が妥当であるかを検討する必要がある。このサイクル数が少ないときには、計測器の持つ計測誤差のために、計測結果にばらつきが生じてしまうが、サイクル数が多すぎると、逆に真の値との誤差が大きくなる。後述する3.4節では、多孔質媒体中に存在するとした水、オイルの量を透過強度の計測値から定量化し、それを、既知の水、オイルの量と比較することで、定量化の妥当性を評価している（実験の詳細は3.4節参照）。この比較は6個のデータについて行っているが、そのときの相関係数は、計測値に対して行う移動平均のサイクル数によって図1のように変化する。この図から、サイクル数が500のとき、相関係数が最大となることが分かった。したがって、本研究で

は計測値に対し、移動平均を500サイクル行うこととした。

3.3 多孔質媒体中に2相流体が存在している場合の計測

ここでは、2.2節で述べた理論が適切であるかどうかを、多孔質媒体の透過強度を計測することによって確かめ、さらに、各エネルギーにおける水、オイルの線減弱係数を得ることを目的とした実験を行った。

式(6)より、多孔質媒体単位面積あたりの水の量 $x_w (= \theta_w L)$ を変えて多孔質媒体の透過強度 I を計測すれば、各エネルギーにおける μ_w が得られる。ここでは、径1 mmのガラスビーズを、内容積が100mm×100mm×30mmの亚克力ボックスに充填し、多孔質媒体とみなした。一般に多孔質媒体中では毛細管現象が働くため、媒体中の体積含水率の空間分布をコントロールすることができない。そこで、ガラスビーズを入れる亚克力ボックスとは別のボックスを準備し、そのボック

図1 移動平均のサイクル数と相関係数の関係

Fig. 1 The relationship between the number of moving average cycles and correlation coefficient. See text for details

図2 多孔質媒体中に水が存在している場合の計測の模式図(左)とそれに等価な計測の模式図(右)。線源の横に記されている I_0 は多孔質媒体への入射X線強度、計測器の横に記されている I_s 、 I は各サンプルにおける透過X線強度を表している。

Fig. 2 Schematic figure showing the experiments with the existence of pore water (left), and the equivalent measurement method which can control the water content (right). I_0 indicates the incident X-ray intensity, I_s and I indicate the X-ray transmission intensities through the medium.

スに水を一定量入れることにより (図2)、多孔質媒体中に既知の体積含水率の水が存在しているときと等価であるとみなした。

本研究では、水を入れたボックス中の水深を4、8、12mmの3通りとし、実験を行なった。実験では、図2に示されているように、まず、乾燥した試料上面から下に向かって透過強度を計測し、その後、水をボックスに入れた状態での計測を実施した。図3a)は、横軸に体積含水率 θ_w 、縦軸に $-\ln(I/I_s)$ をとって、計測結果をプロットし

たものである。ただし、この図では代表的に2つのエネルギーにおける結果を示した。各エネルギーのプロットに対して、y切片を0に固定し、最小2乗法に基づいて回帰直線を引いた。その傾きは、各エネルギーにおける $L\mu_w$ を表している。このような作業を行うことにより、各エネルギーにおける μ_w を得た。次に、水をオイルに換えて同様の計測を行い、水の場合と同様、 μ_n を得た (図3b)。

ところで、本研究で使用した計測データには、

図3 体積含水率及び体積含油率を変化させたときの $-\ln(I/I_s)$ の変化。図3a)が体積含水率を変化させた場合、図3b)が体積含油率を変化させた場合を示す。

Fig. 3 Change of $-\ln(I/I_s)$ as a function of volumetric water content (Fig. 3a) and volumetric oil content (Fig. 3b).

ポアソン分布に従うノイズが含まれる。これは、X線光子と物質の相互作用が確率的過程であり、変動を伴うからである(飯沼・館野、2001)。このとき、平均 $\bar{I}$ の計測値が得られている場合の分散は、

$$V(\bar{I}) = \bar{I} \quad (17)$$

で与えられる(東京大学教養学部統計学教室、1991)が、いま1回の測定で計数値 I が得られたとき、實際上 I は $\bar{I}$ に近いとして、分散を、

$$V(I) = I \quad (18)$$

と見積もることができる。さらに、式(16)による移動平均を500サイクル行なった後の各計測値が持つ分散を計算し、 $-\ln(I/I_0)$ が持つ標準偏差 σ を求めた。その上で、各データ点に対して、 $\pm 1\sigma$ を縦軸方向の誤差として見積もった。結果的にその誤差は非常に小さな値(10^{-3} 程度)となり、いずれのエネルギーにおけるデータに対しても、近似に同じ値となった。

上述の方法により、すべてのエネルギーにおいて、水、オイルの線減弱係数が得られた(μ の計測値と呼ぶ)。一方、一般的に知られている各元素の質量吸収係数と各元素の重量比を用いて、理

論的に水、オイルの線減弱係数を計算することができる(μ の理論値と呼ぶ; Henke et al., 1993; 理学電機株式会社、1999)。これら2通りの方法で得た水、オイルの線減弱係数を比較した(図4)。

図4において、33.17、37.44keVに2つの吸収端が見られる。これらはそれぞれ、オイルに溶けているヨウ素、水に溶けているバリウムの吸収端である。また、27keVより低いエネルギー領域と、42keVより高いエネルギー領域において、の計測値と理論値に大きな差異が見られる。この原因は、計測時のカウント数(透過X線強度)が小さいために計測誤差が相対的に大きくなったからであると考えられる。したがって、今後は27~42keVのエネルギー領域を考慮することとする。考慮するエネルギー領域において、各吸収端より低いエネルギー領域では、 μ の計測値と理論値がよく一致している。しかし、吸収端付近と、それより高い領域においては一致していない。すでに述べた計測器の特性により、本来は μ が不連続的に変化する吸収端においても、 μ は連続的に変化するよう計測される。このため、実験では、理論で予測されるような不連続なデータとしては計測されないことになる。吸収端より高いエネル

図4 2通りの方法で得た水・オイルの線減弱係数(それぞれ、 μ_w 、 μ_n)の比較

Fig. 4 Comparison between theoretically obtained linear absorption coefficients and experimentally obtained ones. See text for details.

ギー領域では、 μ の計測値が理論値に比べやや大きい値へ平行移動しているが、この原因については不明であり、今後検討を行なう必要がある。但し、この不一致は、実験で求められたデータに基づいて議論している限り、以下の検討には影響を与えない。

3.4 多孔質媒体中に3相流体が存在している場合の計測

ここでは、3.3節で得た各エネルギーにおける水、オイルの線減弱係数を用い、2.3節で述べた定量化手法が妥当であるかどうかを、多孔質媒体の透過強度を計測することによって確かめることとした。

3.3節と同様、直径1mmのガラスビーズを、内容積が100mm×100mm×30mmの亚克力ボックスに充填し、多孔質媒体とみなした。また、ガラスビーズを入れる亚克力ボックスとは別のボックスを2つ準備して、それぞれのボックスに一定量の水、オイルを入れ、それらを、ガラスビーズを充填したボックスの上に重ねることによって、多孔質媒体中に既知の液体量が存在しているときと等価であるとした。ここでは、水深及びオイルの厚みを、それぞれ(0mm, 0mm)、(4mm, 4mm)、(8mm, 4mm)、(4mm, 8mm)の4パターンとし、多孔質媒体中のX線透過強度を計測した。ここで、(0mm, 0mm)の計測を行ったのは、ボックスを3つ重ねた状態に対して $I_s(E)$ を計測するためである。

計測値に対し式(13)、(14)を適用して得られた結果を実際に入れた量(真の値)と比較した(表2)。この計算における体積含水率、体積含油率は、ボックス中の水深、オイルの厚みを30mm厚さの多孔質媒体中に存在する液体量と等価なものとして用いている。ここで、計測誤差を考慮し

たとき、導かれる θ_w, θ_n に含まれる誤差が最小となるエネルギーの組合せに対して、式(13)、(14)を適用した。以下、そのエネルギーの組合せについて述べる。

式(13)、(14)において、各線減弱係数には計測誤差は含まれていないと考えられる。これは、線減弱係数を得るための計測(3.3節参照)をくり返し行うことにより、高精度で全エネルギーにおける線減弱係数を得ることができるからである。したがって、式(13)において、 m に計測誤差が含まれているとき、導かれる θ_w が持つ分散は以下のように評価できる。ここで、簡単のため、

$$\left. \begin{aligned} A_w &= \frac{1}{L} \frac{\mu_n(E_2)}{\mu_w(E_1)\mu_n(E_2) - \mu_w(E_2)\mu_n(E_1)} \\ B_w &= \frac{1}{L} \frac{-\mu_n(E_1)}{\mu_w(E_1)\mu_n(E_2) - \mu_w(E_2)\mu_n(E_1)} \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

とおく。このとき、式(13)は、

$$\theta_w = A_w m_{E_1} + B_w m_{E_2} \quad (20)$$

と書ける。3.3節で述べたように、いずれのエネルギーにおいても、計測値が持つ分散は近似的に等しい。

$$V(m_{E_1}) = V(m_{E_2}) = V(m) \quad (21)$$

したがって、式(20)、(21)より、 θ_w が持つ分散は、

$$V(\theta_w) = A_w^2 V(m_{E_1}) + B_w^2 V(m_{E_2}) = (A_w^2 + B_w^2) V(m) \quad (22)$$

と表すことができる(東京大学教養学部統計学教室、1991)。式(22)より、 $A_w^2 + B_w^2$ が最小となるエネルギーの組合せのとき、 θ_w が持つ分散は最小になる。図5に、30~40keVにおける、すべて

表2 分散を最小にするエネルギーの組合せによる計算結果と真の値との比較。相関係数は0.998

Table 2 Comparison between calculated volumetric fluid content using the combination of energy bands which minimizes the variance and real fluid content. Correlation coefficient is evaluated to be 0.998

	体 積 含 水 率			体 積 含 油 率		
	真 の 値	計 算 値	誤 差	真 の 値	計 算 値	誤 差
1	0.133	0.135	1.5 %	0.133	0.126	5.7 %
2	0.267	0.268	0.4 %	0.133	0.126	5.7 %
3	0.133	0.128	3.7 %	0.267	0.275	3.2 %

のエネルギーの組合せに対する $\log(A_w^2 + B_w^2)$ の値を示した。今回の実験において、 $A_w^2 + B_w^2$ が最小となるのは、34.58keVと38.68keVの組合せであった。同様に、式(14)により得られる θ_n に含まれる誤差が最も小さくなるエネルギーの組合せを考察した。その組合せは、34.48keVと38.72keVであった。

ところで、計測値に対して、式(16)による移動平均処理を行わなかった場合、表2と同様に相関係数を計算すると、0.963であった。次に、 θ_w , θ_n に含まれる誤差が大きいエネルギーの組合せ(35.74、36.32keV)で、式(13)、(14)を計算した場合、相関係数は0.102であった。このように、計測値に対して移動平均処理を行わなかった場合や θ_w , θ_n に含まれる誤差が大きいエネルギーの組合せで計算した場合、真の値との誤差は大きくなった。したがって、計測値に対して移動平均処理をくり返し行い、さらに θ_w , θ_n に

含まれる誤差を最小にするエネルギーの組合せで、式(13)、(14)を計算するという定量化手法を適用することにより、体積含水率、体積含油率をそれぞれ精度よく(5%前後の誤差)求めることができたと評価できる。

4. 二次元多孔質媒体内3相流体分布の定量化

ここでは、3.4節で妥当性が確かめられた、多孔質媒体中に3相流体が存在している場合の定量化手法を用いて、二次元多孔質媒体内における3相流体分布の定量化を行った。

計測は2種類の多孔質媒体に対して行った。一方は、間隙が空間的に均質な多孔質フィルター(以後、多孔質媒体1と呼ぶ)、他方は、間隙が不均質な多孔質岩(以後、多孔質媒体2と呼ぶ)である。使用する多孔質媒体の大きさは、ともに $30 \times 30 \times 30\text{mm}$ の立方体である(図6)。多孔質媒体

図5 30~40keVにおける、すべてのエネルギーの組み合わせに対する $\log(A_w^2 + B_w^2)$ の値。34.58keVと38.68keVの組み合わせ(図中の黒丸印)のとき、 $A_w^2 + B_w^2$ は最小となる。

Fig. 5 Values of $\log(A_w^2 + B_w^2)$ for all energy combinations at the range of 30 to 40 keV. Note that the combination of 34.58keV and 38.68keV (black dot) shows the minimum value of $A_w^2 + B_w^2$.

から液体が漏れることを防ぐために、側面を接着剤でコーティングし、下面をアクリル板に接着した。ここで、後述する3回の計測を通して、多孔質媒体をX-Yステージ上の同じ位置に設置する必要がある。そのため、アクリル板の角をサンプル設置用のアルミニウム台に引っかけて固定、サンプル

を常に同じ位置に固定できるようにした。サンプル設置用のアルミニウム台はX-Yステージに接続されている。

まず、水、オイルを入れる前の多孔質媒体（状態1と呼ぶ）の透過強度を計測する。計測の手順は以下のとおりである。

図6 (a) 実験に用いた多孔質媒体とX-Yステージへの設置の模式図
(b) 実験装置の写真

Fig. 6 (a) Schematic figure showing the setting of sample to X-Y stage.
(b) Photograph showing the experimental apparatus.

線源と計測器は固定する。計測は多孔質媒体の角から開始する。多孔質媒体の固体粒子の粒径を考慮し、1回の計測面積は $3 \times 3 \text{ mm}$ とする。計測を30秒間行った後、X-Yステージを用いて、多孔質媒体を3 mm間隔でX方向あるいはY方向に移動させる。そして再度計測を行う。このように、計測と多孔質媒体の移動をくり返し、多孔質媒体全体にわたって計測を行う。場所 (x,y) における計測結果を $I_s(x,y)$ とする ($1 \leq x,y \leq 10$)。

次に、状態1の多孔質媒体の間隙を水で飽和させる。この多孔質媒体(状態2と呼ぶ)の透過強度を計測し、その計測結果を $I_{us}(x,y)$ とする。

さらに、状態2の多孔質媒体を完全に乾燥させる。このとき、乾燥に伴い、多孔質媒体の内部や表面に塩化バリウムが析出する。この析出した塩化バリウムを、水洗いをくり返して完全に除去する。乾燥と水洗いをくり返し、状態2の多孔質媒体を状態1に戻す。この状態1の多孔質媒体に、既知量の水、オイルを注射器で注入する(多孔質媒体1には、水、オイルをそれぞれ3.00mlずつ、多孔質媒体2には、それぞれ0.60mlずつ注入した)。この多孔質媒体(状態3と呼ぶ)の透過強度を計測し、その計測結果を $I(x,y)$ とする。

まず、 $I_s(x,y)$ と $I_{us}(x,y)$ に対し、式(4)を適用することにより、間隙率の分布が得られる。次に、 $I_s(x,y)$ と $I(x,y)$ に対し、式(13)、(14)を適用することにより、体積含水率、体積含油率の分布が得られる。さらに、式(15)より、ガスの存在率の

分布が得られる。

計測した結果、多孔質媒体1の間隙率は、多孔質媒体全体にわたってほぼ均質であり、平均的な間隙率は35.7%であった。一方、状態1と状態2の多孔質媒体の重量差から多孔質媒体全体の平均的な間隙率(真の値)が得られる。その値は36.9%であった。したがって、計測による誤差は3.3%であった。図7aに、多孔質媒体1の体積含水率の分布を示す。ここで、各計測地点で得られた体積含水率から、多孔質媒体全体に存在している水の総量が計算できる。その値は3.28mlであった。実際に入れた水の量は3.00mlであるから、計測による誤差は9.4%である。図7bに、多孔質媒体1の体積含油率の分布を示す。水の場合と同様に、多孔質媒体全体に存在しているオイルの総量を計算すると2.86mlであった。実際に入れたオイルの量は3.00mlであるから、計測による誤差は4.8%である。図8には、多孔質媒体2の間隙率、体積含油率の分布を示す。これらの比較の結果は表3に示されている。ここで、多孔質媒体1に比べ、多孔質媒体2の方が大きな誤差となったのは、多孔質媒体2の間隙率が小さく、間隙に分布している水、オイルの量が少ないため、端面付近の計測時における誤差が大きく影響したためと考えられる。この点は、今後の課題であるが、今回用いた試料よりも大きなサイズの媒体を用いることにより、この誤差を減らすことができると考えている。

図7 多孔質媒体1の体積含水率(a)、体積含油率(b)の分布

Fig. 7 Distribution of volumetric water content (a) and volumetric oil content (b) in the porous medium 1.

このように、本研究で実施した手法により、原理的には、多孔質媒体内の3相流体分布を非破壊、非侵襲的に計測することが可能であることが示された。しかし、今回、多孔質媒体全体での計測時間は、30mm×30mmの面積に対して、X-Yステージによる移動時間も含めて50分強であった。この計測時間では、実際の流体挙動を評価するためのより大きな試料を対象として3相流体分布の経時変化を定量化する場合、流体移動の影響を含んだ計測結果になってしまうことが予想される。その問題を避けるためには、より高性能な(エネルギー分解能が高く、かつカウント速度が速い)計測器や、二次元計測が可能なエネルギー分散型計測器の利用によって、多孔質媒体全体の計測時間を短縮する必要がある。また、次節に述べるような、CT法との結合を検討することも必要となる。

5. 三次元多孔質媒体内3相流体分布の定量化の可能性

ここでは、多孔質媒体中に存在している3相流体分布を、三次元的に定量化できる可能性について考察する。多孔質媒体中に存在している3相流体分布を三次元的に定量化することができれば、二次元的に定量化するよりも多くの情報を得ることができる。

現在、X線CT技術を用いて、物体の内部構造の三次元的な画像化、定量化が行われている。X線CTは、X線が様々な方向から物体の内部を透過して形成する投影の集合から、物体内の線減弱係数の分布を再構成する技術である。物体内の各地点における再構成された線減弱係数が、どの物質の線減弱係数であるかを特定することができれば、各物質の空間分布を定量化することができる。しかし、X線CTが有する空間分解能(一般的には0.1mm~1mm程度)より微細な内部構造

図8 多孔質媒体2の間隙率(a)、体積含油率(b)の分布

Fig. 8 Distribution of porosity (a) and volumetric oil content (b) in the porous medium 2.

表3 計測により得られた値と真の値の比較

Table 3 Comparison between experimentally obtained values and real values

	多孔質媒体 1			多孔質媒体 2		
	真の値	計算値	誤差	真の値	計算値	誤差
間隙率	36.9 %	35.7 %	3.3 %	19.3 %	18.6 %	3.8 %
水の総量	3.00 ml	3.28 ml	9.4 %	0.60 ml	0.71 ml	17.9 %
オイル総量	3.00 ml	2.86 ml	4.8 %	0.60 ml	0.55 ml	8.5 %

を対象としたとき、各地点において再構成された線減弱係数は、その地点に存在している各物質の線減弱係数の加重平均値として得られる。このとき、その重みづけ、つまりその場所における各物質の存在比を得ることはできない。多孔質媒体中の多相流体分布は、非常に微細な構造を示す。したがって、従来のCTではその分布を定量化することができない。

ここで、投影の計測においてエネルギー分散型計測を行うことを想定し、従来のX線CTの画像再構成技術に2.3節で述べた手法を付加することを考える。そうすることで、X線CTが有する空間分解能で、多孔質媒体中の3相流体分布を三次元的に定量化することが可能になると考えられる。

本研究では、第3世代方式のX線CTを想定した(飯沼・館野, 2001)。まず、多孔質媒体のある断面の体積含水率、体積含油率の分布を与える。ここでは、断面を格子数 128×128 個の正方形に分割した。X線ファンビームの広がり角は 60° 、並べた計測器の数は121個とする。また、 1° 回転させるごとに投影データのエネルギー分散型計測を行うこととする。これらの設定のもとで、重畳積分法(斎藤, 1993)と2.3節で述べた手法を組み合わせて、体積含水率、体積含油率の分布の再構成を行い、再構成後に得られた体積含水率、体積含油率を、それぞれ与えた値と比較することにより、手法の妥当性を評価した(渡辺, 2004MS)。

ここでは、多孔質媒体中の二次元的な体積含水率、体積含油率として、4節の多孔質媒体1で得られた各相流体の分布(図7)を用いた。具体的には、図7の各グリッドの体積含水率、体積含油率の値をその中心点の値とし、それらを線形補間することにより、媒体内の流体分布を与えた(以後、これを設定した体積含水率、体積含油率と呼ぶ)。図9には、設定した体積含水率、体積含油率分布と、X線CT計測を行なったと想定した場合の再構成後の分布を並べて示した。ここで、設定した体積含水率と再構成後の体積含水率との相関係数は0.964、体積含油率のそれは0.969となり、良く一致しているといえる。従って、X線CT技術にエネルギー分散型計測を付加することによって、多孔質媒体中の3相流体分布を再構成できると言える。

6. まとめ

多孔質媒体中の3相流体(水、オイル、ガス)分布を定量化することを目的とした研究を行った結果、以下の結論を得た。

1. 二次元多孔質媒体中の水、オイル、ガスの3相流体分布を短時間で計測するための手法として、既存の文献調査を行った結果、一般に用いられている手法(複エネルギー γ 線法、光透過法、X線透過法)のどれも問題点が存在しており、新しい計測手法の開発が必要であることが明らかとなった。
2. 二次元多孔質媒体の透過X線に対し、エネルギー分散型の計測を行った。その計測結果において、計測値(透過X線強度)に対して移動平均処理を行い、さらに適切な2つのエネルギーの計測値に注目することで、多孔質媒体中に存在している既知量の水、オイルを定量化した。計測値から得られた流体各相の量と実際の量を比較することで、理論的に導かれた定量化の手法が妥当であることを確認した。本研究における誤差の最大値は、流体の体積含水率、体積含油率の比較では5.7%であった。
3. 確認した手法を用いて、二次元多孔質媒体中に存在している3相流体分布を、多孔質媒体全体にわたって定量化することができた。加えて、この手法は、間隙率の分布が不明の多孔質媒体に対しても適用できることが分かった。多孔質媒体中に含まれる流体の全体量による精度の検討では、ひとつのケースを除き、その誤差は10%以内であった。10%以上の誤差が出たケースにおいても、その絶対値は、約0.1mlであり、比較的良好な結果であると判断される。
4. 従来のX線CTの技術に、新たにエネルギー分散型計測を付加することで、多孔質媒体中に存在している3相流体分布を三次元的に定量化することの可能性を検討した。本研究では、多孔質媒体中の1断面に対するファンビーム投影による投影データから、重畳積分法を用いて、その断面の画像再構成を行った。その結果、エネルギー分散型計測を導入

することで、多孔質媒体中の3相流体分布を三次元的に定量化できることが示唆された。

謝 辞

本研究は、平成13年度石油公団技術交流調査(研究課題「電磁波吸収特性の周波数依存性に着目した石油移動過程の可視化・定量化システムの

開発」研究代表者 徳永朋祥)および科学研究費萌芽研究(研究課題「電磁波吸収の波長依存性に着目した多孔質媒体内3相流体分布の可視化・定量化」研究代表者 徳永朋祥)によって行なわれた研究の一部である。また、本論文は、2名の匿名の査読者のコメントにより改善されました。ここに記して謝意を表します。

図9 (a) 設定した体積含水率分布(左)と再構成後の分布(右)。相関係数は0.964。

(b) 設定した体積含油率分布(左)と再構成後の分布(右)。相関係数は0.969。

Fig. 9 (a) Distribution of hypothetical volumetric water content in the porous medium (left) and reconstructed one (right). Correlation coefficient is 0.964.

(b) Distribution of hypothetical volumetric oil content in the porous medium (left) and reconstructed one (right). Correlation coefficient is 0.969.

参考文献

- 飯沼 武・館野之男 (2001):『X線イメージング』コロナ社、227p.
- 日本地盤環境浄化推進協議会 (2002):『土壌・地下水汚染の実態とその対策』オーム社、158p.
- 大崎順彦 (1994):『新・地震動のスペクトル解析入門』鹿島出版会、299p.
- 理学電機株式会社 (1999):『X線回折ハンドブック』リガク電機株式会社、86p.
- 斎藤恒雄 (1993):『画像処理アルゴリズム』近代科学社、181p.
- 東京大学教養学部統計学教室 (1991):『統計学入門』東京大学出版会、307p.
- 渡辺琢也 (2004MS):『連続X線を用いた多孔質媒体内3相流体分布の定量化に関する研究』東京大学大学院工学系研究科地球システム工学専攻修士論文、86p.
- Darnault, C.J.G., D.A. DiCarlo, T.W.J. Bauters, A.R. Jacobson, J.A. Throop, C.D. Montemagno, J.Y. Parlange, and T.S. Steenhuis (2001): Measurement of fluid contents by light transmission in transient three-phase oil-water-air systems in sand. *Water Resources Research*, 37, 1859-1868.
- Henke, B.L., E.M. Gullikson, and J. C. Davis (1993): Photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E=50-30000\text{eV}$, $Z=1-92$. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 54, 181-342.
- Høst-Madsen, J.K. and Høgh Jensen (1992): Laboratory and numerical investigations of immiscible multiphase flow in soil. *Journal of Hydrology*, 135, 13-52.
- Illangasekare, T.H., J.L. Ransey Jr., K.H. Jensen and M.B. Butts (1995): Experimental study of movement and distribution of dense organic contaminants in heterogeneous aquifers. *Journal of Contaminant Hydrology*, 20, 1-25.
- Oostrom, M. and J.H. Dane (2000): Gamma radiation techniques in subsurface multifluid flow and transport studies. *Proceedings of ASME FEDSM'00*, 1-7.
- Tidwell, V.C. and R.J. Glass (1994): X-ray and visible light transmission for laboratory measurement of two-dimensional saturation fields in thin-slab systems. *Water Resources Research*, 30, 2873-2882.
- Van Geel, P.J. and J.F. Sykes (1994): Laboratory and model simulations of a LNAPL spill in a variably-saturated sand. I. Laboratory experiments and image analysis techniques. *Journal of Contaminant Hydrology*, 17, 1-25.

(受付:2005年1月17日、受理:2005年7月20日)