論 説
 Original Article

三相屈折率マッチングによる原油増進回収挙動のリアルタイム可視化

植村 豪^{*,†}・小池 史明^{*}・津島 将司^{**}・平井 秀一郎^{*}

(Received January 14, 2015 ; accepted May 15, 2015)

Real-time visualization of enhanced oil recovery process by using three-phase refractive index matching

Suguru Uemura, Fumiaki Koike, Shohji Tsushima and Shuichiro Hirai

Abstract : Enhanced oil recovery (EOR) has already been in practical use to recover the residual oil from depleted oil reservoirs. In order to improve the efficiency of EOR, fundamental mechanism of recovery process needs to be clarified; however, real time observation of the flow in the porous structure is difficult. In this study, three-phase refractive index matching method was adapted to visualize the two-phase flow of surfactant flooding in a micro-scale porous media. Three-dimensional dynamics of oil recovery process was observed by using adequate test fluids and optical system. As a result, mobilization and coalescence of residual oil droplets were able to be visualized clearly. Time dependent variation of recovery ratio was also analyzed quantitatively. Finally, extensibility of presented technique for three-dimensional visualization was also discussed.

Keywords : Refractive Index Matching, Porous Media, Two-Phase Flow, Enhanced Oil Recovery, Surfactant flooding

1. 緒 言

原油増進回収 (Enhanced Oil Recovery, EOR) は生産性が低下した油層内に CO₂, 水蒸気, 酸, 界面活性剤, ポリマーなどを注入し, 原油の増産を図る手法である。原油の物理的性状を変化させ, 油層内の微細な空隙に取り残された原油を回収し易くすることが EOR 共通の基本原則であり, 対象とする油層の原油性状, 地理的条件, コストなどに応じて, さまざまな注入流体を利用する。すでに多数の枯渇油田において EOR プロジェクトが実施されているため, EOR は確立された原油増産技術と言えるが, EOR 適用の是非をあらかじめ適切に判断するとともに, EOR の実施による油田の生産効率をさらに高めるためには, 油層内で生じている油回収過程を基礎的に理解することが依然として重要な課題である。

EOR では圧入井から生産井にかけて, メートルオーダーまたはキロメートルオーダーの空間スケールで油が回収されるが, 本質的な原油回収過程を捉えるためには, 油層内

のマイクロメートルオーダーの微細な空隙で生じている現象に着目しなければならない。すなわち EOR における油の回収率は, 残留原油と注入流体の二相流の状態によって決定付けられているため, 空隙内の流れ場をミクロスケールで可視化計測することが必要不可欠である。このため EOR を模擬した多数の研究が行われ, さまざまな実験系を対象とした原油回収過程の可視化計測が試みられている。これらの研究例を実験系の観点から着目すると, 一次元や二次元に限定した流れ場を観察した実験系, あるいは三次元の流れ場を対象とした実験系に大別できる。

例えば円管内に形成した粒子充填層を対象とした研究では, 主に軸方向の流れ場に着目しており, 一次元的な多孔質モデル内の流れを観察していると言える (Gajbhiye *et al.*, 2011 ; Hirasaki *et al.*, 2011)。一次元の多孔質モデルは構築が比較的容易であり, 円管を透明な部材で構成することで流れ場の直接観察も可能となる。しかし, 観察できるのは容器の壁面近傍だけであり, 多孔質モデル内部の流れ場を観察することはできない。特に充填層は中心付近よりも円管の壁面近傍の方が流動しやすくなるため, 多孔質内部の流れ場が正確に観察できていない恐れがある。

一方, 平行な平板間で奥行方向を薄くした多孔質充填層を構築し, 油層を二次元の多孔質モデルとして捉えた研究も多数見られる (Tayal *et al.* 1990 ; Hirasaki *et al.*, 2011;

* 東京工業大学 大学院理工学研究科 機械制御システム専攻 Department of Mechanical and Control Engineering, Tokyo Institute of Technology

** (現在の所属機関) : 大阪大学 大学院工学研究科 機械工学専攻 Department of Mechanical Engineering, Osaka University

† Corresponding author : E-Mail : uemura@mech.titech.ac.jp

Guillen *et al.*, 2012)。さらにガラスエッチング技術によって油層の空隙構造を模擬し、顕微鏡を用いた可視化例も極めて多い。(Bora *et al.*, 2000 ; Riaz *et al.*, 2011)。これらの研究例ではミクロスケールの空隙内で形成される二相界面の状態や、各相が流動する過程について、詳細な観察を可能としている。このように、一次元多孔質モデルが大局的な回収過程を捉える一方、二次元多孔質モデルでは空隙における原油回収の素過程が捉えやすい。しかし可視化の容易さと引き換えに、流体はガラス板で挟まれた薄い空間内しか流れることができず、厚さ方向の流れ場が制約されるとともに、可視化容器壁面の影響も著しく受けてしまう。

このため、多孔質モデル内部の流れ場を三次元的に観察するためには、X線断層撮影法(Computed Tomography, CT) (Wellington *et al.*, 1987 ; 大瀬戸ら, 2007 ; Farajzadeh *et al.*, 2010) や磁気共鳴イメージング(Magnetic Resonance Imaging, MRI) (Liu *et al.*, 2011) など、可視光ではなくX線や磁場を用いた計測手法を採用する必要がある。これらの手法であれば、実際の油層コアサンプルと原油サンプルを対象とし、さまざまな注入流体を用いたEORにおける原油回収過程が観察可能である。しかし、いずれの手法も撮像に時間を要するため、空隙内部の流れ場をリアルタイムで捉えることはできず、さらにミクロスケールの多孔質モデル内に分布する流体の相判別も困難である。

そこで本研究では油層を模擬した多孔質モデル内の流れ場の観察するため、多孔質モデルの空隙中の二相流をミクロスケールでリアルタイムに直接可視化する三相屈折率マッチング法を開発し、水攻法および界面活性剤攻法(Hirasaki *et al.*, 2011)における流れ場の観察を行った。ガス攻法や熱攻法で用いられる気体や超臨界流体は屈折率の制御が困難であるが、水攻法と界面活性剤攻法は液体を油層内に注入するため、流体と固体の屈折率を合致させる三相屈折率マッチング法が最も適用し易い系である。本研究では実際の油層構造を模擬した三次元的な多孔質モデルを用い、水攻法および界面活性剤攻法の原油回収過程で生じるミクロスケールの基礎的な流れ場について、リアルタイム可視化計測を試みた。

2. 三相屈折率マッチング

流れ場を簡便かつリアルタイムに観察するための機器として、可視光領域の光源とCCDカメラの組み合わせが最も機器の性能、種類の自由度が高く、実験中に肉眼でも容易に視認することができる。可視光による観察に対し、多孔質モデルの構成部材に透明な素材を用いれば、多孔質モデル内部を可視光が透過できるため、流れ場の観察が可能となる。しかし、多孔質モデルの容器壁面や多孔質構造といった構成部材(固相)と試験流体(液相)の屈折率 n が異なると、固液界面において光の屈折が生じるため、厚みのある多孔質モデル内部を明瞭には観察できない。

そこで塩や糖を水に溶解させると屈折率が増加することを利用し、固相と液相の屈折率を合致(マッチング)させ、多孔質内部の流れ場を明瞭に可視化する(Budwig,

図1 スクロース水溶液の屈折率変化

1994)。このような屈折率マッチング法はエンジン内部や血管など、複雑形状の流路内の単相流を可視化する手法として知られている。一般的には流路をアクリル($n=1.49$)で構成する一方、水($n=1.333$)にヨウ化ナトリウム(NaI)やグリセリンを溶かすことで流体の屈折率をアクリルと一致させ、固液二相の屈折率マッチングを行っている例が多い。原理的には固液二相系の屈折率マッチングに対して油相を追加することで、固相/水相/油相の三相屈折率マッチングが可能である(Fontenot *et al.*, 2002 ; Stöhr *et al.*, 2003)。ただし、界面活性剤攻法を対象とした三相屈折率マッチングを実現し、さらにミクロスケールでの流れ場をリアルタイムで観察するためには、次項に示すような種々の制約を解決しながら、最適な実験系の構築が必要である。

2.1. 水相の屈折率制御

界面活性剤攻法を可視化対象とする場合、NaIの添加による水の屈折率マッチングを行うと、Naイオンによってイオン系界面活性剤の効果が阻害されてしまう。本研究では界面活性効果を阻害せずに水の屈折率マッチングを実現する物質として、金属イオンを含まず、水に溶解してもイオン化しない糖(スクロース)を用いた。図1はスクロース水溶液の濃度に対する屈折率の変化を示している(Budwig, 1994)。室温(20°C)において濃度65%まで溶解し、屈折率は $n=1.453$ まで高められる。温度をさらに高く設定すれば溶解度は増加するが、実験系全体の温度制御を簡便化するため、本研究では室温下で実験を行った。なお、スクロース水溶液はNaI水溶液よりも濃度に対する粘性変化が大きいので、多孔質内の易動度を精緻に模擬する場合には注意を要する。

2.2. 固相の選定

多孔質モデルを構成する部材には、スクロース水溶液でマッチングできる範囲内の屈折率を有する透明な材料を適用しなければならない。候補としてガラス($n=1.45-1.96$)、アクリル($n=1.49$)、シリコーンゴム($n=1.437$)が挙げられ、これらの部材の中では耐油性や加工性の観点からガラスが最も適している。ただし、一般的なガラスの

屈折率の下限値は 1.45 程度であり、スクロース水溶液で制御可能な屈折率との重複範囲が極めて狭い。また、後述するように油の屈折率も小さいため、油相との屈折率マッチングも困難である。そこで本研究では従来のガラスよりもさらに低い屈折率を実現した低屈折率ガラス (HOYA 製, FCD100) を用いた。FCD100 は屈折率 1.437 であるため、スクロース水溶液でも屈折率マッチングが容易にできる範囲にある。

2.3. 油相の屈折率制御

図 2 に主要な油 (炭化水素各種, および脂肪酸) の分子量に対する屈折率を示す。鎖状飽和炭化水素 (C_nH_{2n+2} , パラフィン, アルカン, Alkane), 環状飽和炭化水素 ($C_nH_{2n-1}R$, ナフテン, シクロアルカン, Cycloalkane), 芳香族炭化水素 (C_6H_5R , Aroma) は原油にも含まれる成分であり, 植物油 (Vegetable oil) は植物から抽出される油である。芳香族と植物油はスクロース水溶液や FCD100 よりも屈折率が非常に大きく, 屈折率マッチングは実現できない。一方, アルカンでは分子量 250 付近において, FCD100 とほぼ同等の屈折率を有する油が存在するが, 図 3 に示す各油の凝固点に着目すると, アルカンは分子量 250 付近で凝固点が

図 2 主要な油の分子量に対する屈折率変化とガラス (FCD100) の屈折率

図 3 主要な油の分子量に対する凝固点

20℃より高く, 室温付近では固相になってしまう。

そこで本研究では, 屈折率が FCD100 と同等, かつ凝固点が十分に低い油種として, シクロアルカンに着目した。図 2 に示すように, FCD100 の屈折率と完全に合致する単一の油は存在しないため, エチルシクロヘキサン (C_8H_{16} , 分子量 112.21, 屈折率 1.433,) とシクロオクタン ($C_{10}H_{18}$, 分子量 142.29, 屈折率 1.457, 凝固点 10℃) を適切に混合することで, 屈折率を任意に制御し, FCD100 との屈折率マッチングを実現した。

2.4 予備実験結果

図 4 は粉碎した FCD100 を充填した矩形ガラス容器 (水平断面 10 mm×10 mm) を側面から観察した画像である。FCD100 だけでは空気との界面で光が屈折するため, 容器奥側に設置した文字列は全く観察できない。水や油を注入した場合と同様で, 容器奥側まで観察することはできない。ここに FCD100 と屈折率を合わせたスクロース水溶液, あるいはエチルシクロヘキサンとシクロオクタンの混合油を充填すると, 固液界面での屈折率がなくなり, 多孔質充填層の内部が奥行方向に全て見通せていることが分かる。なお, 濡れ性に関する予備実験を別途行った結果, FCD100 は撥水性 (親油性) を呈することが分かった。

3. 三相屈折率マッチングによる多孔質内二相流の可視化

前節で示した三相屈折率マッチングに対し, 可視化対象となる多孔質モデルは実際の油層の条件と乖離しない構造とし, なおかつ可視化を実現できる光学系を構築しなければならない。このため, 以下に示すような種々の条件を合わせながら, 多孔質モデルと可視化光学系を構築する。

3.1 多孔質モデル

油層を模擬するために多孔質モデルはガラス微粒子の充填層とし, ガラス微粒子は前述の FCD100 をミルで粉碎して作製した。粒子形状は球形度が 0.5 ~ 0.8 程度で, ガラス特有の鋭利な多角形状である。得られたガラス粒子は篩にかけ, 粒径が 500 ~ 700 μm の範囲に収まるように揃えた。なお, 粒径の選定は後述する可視化用のカメラレンズの性能とも密接に関連している。

3.2 液相判別

三相屈折率マッチングは固相 / 水相 / 油相 / のそれぞれ

図 4 屈折率マッチングの予備実験例

粉碎した FCD100 粒子充填層 (左), および FCD100 粒子充填層にスクロース水溶液をみたした場合 (中), エチルシクロヘキサン / シクロオクタン混合油を満たした場合 (右)。

の界面で可視光を屈折させない手法であり、図4に示すように各相が全て透明である。したがって各相を判別するためには染料を混ぜる必要があり、本実験では Nile red を用いた。Nile red は疎水性（油溶性）のため、油と界面活性剤水溶液には溶解する一方、水には溶解しない。また Nile red は蛍光性を有し、溶解した Nile red の分子を取り囲む溶媒の種類によって蛍光波長（蛍光色）が変わる。すなわち、油と界面活性剤では Nile red が異なる蛍光色を発するため、それぞれの液相の判別が可能である。本実験では緑色レーザー（波長 532 nm）を用いた結果、油と界面活性剤水溶液はそれぞれ黄色と赤色の蛍光を発した。

3.3 可視化光学系

光源には連続光で出力 1W の緑色レーザーを用いた。多孔質モデル内で任意の断面を明瞭に撮影するため、レーザー光を可視化範囲が照らせるようシート状に拡大するとともに、シート光厚さは多孔質モデルを構成する粒子径よりも薄く、なおかつ均一にしなければならない。このため本実験ではシリンドリカルレンズによってビーム径 3.0 mm のレーザー光をシート状に広げるとともに、約 5 mm 角の可視化断面においてシート光厚さが約 200 μm となるように光学系を調整した。

一方、シート光を照射している断面を鮮明に観察するためには、作動距離が長く、なおかつ被写体に焦点が合う奥行方向の距離（被写界深度）がシート光の厚さよりも十分広くなければならない。さらに撮影領域が広く、多孔質モデル内の広い範囲を高解像度で観察できることが望ましい。これらの条件を満たすため、撮影には長距離顕微鏡（Quester 製、QM1）を用いてメートルオーダーで調整可能な作動距離、および被写界深度約 5 mm を達成し、解像度 1920×1080 pixels のデジタルカメラ（Nikon 製、J1）を組み合わせることで、多孔質モデル内の 5.3 mm×3.0 mm の領域を撮影した。空間分解能は約 3 mm/pixel であるため、粒径 500～700 μm のガラス粒子で構成される空隙も十分に解像できる。

4. 実験装置

実験装置の概略図を図5に示す。シリンジポンプでスクロース水溶液または界面活性剤を注入しつつ、レーザーシート光を照射して多孔質内部の任意断面を観察する。ノズルは先端を上方向に向けたステンレス製注射針（内径 330 μm ）を用い、注入流体をシリンジポンプによって一定流量で注入する。多孔質モデルは破碎と粒径選別を行ったガラス粒子を 10 mm×10 mm×45 mm の矩形ガラスセルに充填して構成した。このとき多孔質モデルの高さは約 20 mm であり、空隙率はおおよそ 50% である。試験流体として、油相にはエチルシクロヘキサンとシクロオクタンの混合物、水相には 60 wt% のスクロース水溶液を用いた。また、スクロース水溶液に 1 wt% のドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウムを添加することで、界面活性剤水溶液とした。流体判別のための蛍光染料（Nile Red）は、油相と界面活性剤水溶液に添加した。

5. 実験結果

5.1 油飽和多孔質モデルへの水攻法および界面活性剤攻法の可視化

油を満たした多孔質モデル内にスクロース水溶液または界面活性剤を注入することで、水攻法と界面活性剤攻法を模擬し、それぞれの場合における多孔質モデル内への浸透および油回収過程を可視化した。

水攻法を模擬した実験結果を図6に示す。スクロース水溶液は 10 $\mu\text{l/s}$ (110 mm/s) で注入し、多孔質モデル内への浸透過程を可視化した結果である。撮影領域はノズル出口近傍で、奥行深さは容器壁面からおおよそ 3 mm である。初期状態 ($t=0$ sec) の画像において、黄色い領域が油、黒い領域がガラス粒子である。また、注入するスクロース水溶液には染料が溶けないため、ガラス粒子と同様に黒色の状態で観察される。スクロース水溶液の注入を開始すると、画像右下に位置するノズル近傍の空隙中から浸透し始め、油が局所的に回収される様子が捉えられている。スクロース水溶液の注入を継続しても、3 sec 後以降は多孔質モデル内の油相と水相の分布には変化が見られない。このため、レーザーシート照射位置を奥行方向に段階的にゆっくりと移動させたところ、図7に示すようにスクロース水溶液は奥行水平方向に流路を形成し、最終的には奥行 6 mm の位置で上方へ浸透していたことが分かった。

一方、図8は界面活性剤水溶液を注入した場合の多孔質モデル内を可視化した結果を示している。前述のスクロース水溶液を用いた実験に対し、本実験は注入流体を変えたのみであり、他の実験条件は同様である。界面活性剤水溶液の注入を開始すると、ノズル近傍の油を徐々に置換しながら上方および水平方向にも浸透し、多孔質モデル内に一様に広がる様子が捉えられている。また、界面活性剤水溶液は連続的に浸透するだけでなく、点線丸印で示した部分のように断面画像中では不連続に界面活性剤水溶液が出現する様子も見られる。これはレーザーシートを照射した可視化断面内だけでなく、奥行方向にも界面活性剤水溶液が浸透している結果であり、浸透過程では三次元的な流れ場が生じていることを示している。

可視化画像からは多孔質モデル内の油の回収過程が捉えられるだけでなく、画像処理による定量的な解析も可能である。カラー画像を二値化処理することで、可視化断面内で油が占める面積 A_{oil} が分かるため、多孔質モデル内の任意断面におけるミクロスケールでの油の置換率（Displacement ratio, $\varepsilon = A_{oil_after}/A_{oil_initial}$ ）が算出できる。図6の 0 sec と 9 sec、および図8の 0 sec と 57 sec の結果について解析した結果、水攻法と界面活性剤攻法の置換率はそれぞれ $\varepsilon_{water} = 0.13$ 、 $\varepsilon_{surfactant} = 0.81$ となり、界面活性剤によって置換率が大幅に向上する様子が捉えられた。

5.2 油不飽和多孔質モデルへの界面活性剤攻法の可視化

実際の油層内に界面活性剤攻法を適用する場合は、一般的には水攻法の後に実施されることが多い。すなわち、前節の実験のような油飽和状態を初期条件とするのではな

図5 実験装置図と多孔質モデル内の可視化例

図6 水攻法を模擬した多孔質モデル内の二相流可視化

図7 異なる二次元断面における可視化結果

図8 界面活性剤攻法を模擬した多孔質モデル内からの油回収過程

図9 多孔質モデル内に点在した油滴の回収過程

図11 時間経過に伴う油滴体積の減少

図12 エマルション形成を伴った油回収過程

図10 時間に対する回収率の変化

く、多孔質モデル内で油と水が混在した初期条件での実験が必要である。そこでスクロース水溶液で飽和した多孔質モデルを構成した後、注射針を用いて油をランダムな位置で注入することで、多孔質モデル内に油滴が点在した状態を再現した。油と水が混在した初期状態であっても、三相屈折率マッチング法を適用しているため、多孔質モデル内部を可視化することが可能である。実験条件は前項と同様とする一方、流れ方向に観察範囲を広く取るため、カメラを90°回転させて縦長の画像で撮影を行った。

図9に可視化結果を示す。可視化領域全体を大局的に見ると、界面活性剤の注入に伴い、空隙中にトラップされていた油滴が回収される様子が捉えられている。局所的な時々刻々の変化に着目すると、5 sec から 10 sec にかけて下方からの界面活性剤水溶液の浸透に伴い、大きな油滴が全体的に上方へと押し上げられ、初期状態では水で満たされていた空隙中へと移動する、あるいは別の液滴と合体する挙動が見られた。10 sec から 45 sec にかけては油滴の上方への移動が停止し、あたかも大きな液滴が縮小するように見えるが、これは可視化断面以外の奥行方向へ油滴が浸透していると考えられる。50 sec までに界面活性剤水溶液は可視化範囲の上端に達し、これ以降は二相の分布に大きな変化はなく、劇的な油の回収は生じてない。

図9における時々刻々の置換率をプロットしたグラフを図10に示す。これらのグラフをみると、界面活性剤の注入後 10 sec から 50 sec の間において、油が多量に回収されていることが分かる。この時間を図9と比較すると、界面活性剤は注入後 10 sec で油滴の下端に達し、50 sec で上端に達するまでの間に油が存在していた領域に浸透しながら、油を置換していることがわかる。一方、60 sec 以降の変化に着目すると、油の置換率は定常に至っておらず、緩やかに油の置換が継続されていることが分かる。図11は図9の結果のさらに時間が経過した際の可視化画像であり、界面活性剤が油滴を押し出す様子は見られないものの、油滴の体積が減少していることが分かる。これは、図9と同じ実験条件で別途実施した可視化実験結果（図12）に

おいて観察されたように、微小な油のエマルションが形成されてバルクの油相から離脱し、空隙中を流動していると考えられる。図12におけるエマルションの直径は約 100 μm であり、図11では同等直径のエマルション形成は観察されなかったが、可視化断面以外の領域でエマルション形成が生じている、あるいは極めて微小なエマルションが油滴から離脱することで、緩やかに油が回収されている可能性が考えられる。

6. 三相屈折率マッチング可視化技術の今後の展望

6.1 三次元可視化への拡張

本実験では屈折率マッチング法を用い、可視化断面を固定して多孔質内の流れ場をリアルタイムで可視化した結果を主に示した。一方、図7で示したように、本手法ではサンプル位置を移動させることで異なる位置の断面画像も容易に取得できる。したがって複数位置の断面画像をスタックすれば、多孔質モデル内全体の三次元的な微細構造と空隙中の流体の分布を、ミクロスケールで可視化、解析することも可能である。

図13に多孔質モデルの三次元可視化例を示す。油を満たした多孔質モデルを手動送り微動装置の上に設置し、 z 方向に 100 μm ずつ移動させて撮影した 50 枚の断面画像を二値化し、ガラス粒子の構造のみを抽出して三次元表示している。この撮影条件では体積要素（ボクセル）の形状が $3 \times 3 \times 100 \mu\text{m}$ となり、マイクロフォーカス X 線 CT (Uemura *et al.*, 2013) から得られる三次元構造が立方体ボクセルで構成されることと比較すると、空間分解能の異方性が大きい。このため、シート光を照射している x - y 断面では多孔質モデルの微細な構造まで捉えられる一方、 y - z 断面や x - z 断面から観察される多孔質構造は粗く構成されていることが分かる。

z 方向の空間分解能を高めるには、シート光の厚さを薄くするとともに z 方向送り量を少なくして、撮影する断面画像の数を増やす必要がある。ミリオーダーの可視化領域

図13 複数の二次元断面画像から構成した多孔質モデルの三次元構造

内で $200\text{ }\mu\text{m}$ 以下の均一なシート光厚さを実現することは光学的には困難である。しかしシート光厚さ $200\text{ }\mu\text{m}$ のままであっても、 z 方向送り量のみ $10\sim 50\text{ }\mu\text{m}$ 程度まで低下させて取得する断面画像を増やせば、三次元構造の概観は図 13 よりも明瞭に捉えられると考えられる。なお、撮影する断面画像を増やすためには、自動送り装置とカメラを同期させた可視化システムを構築することが望ましい。この時、多孔質内で生じる流動速度に対し、撮影時間は十分に短くなければならず、実験条件によっては可視化容器に急速な往復運動を与えなければならない。そこで流動場や多孔質構造への影響を低減するため、これまでの研究ではレーザーシート光とカメラを同じステージ上に載せて移動する (Fontenot *et al.*, 2002; Stöhr *et al.*, 2003), あるいはプリズムを回転させてシート光の照射位置を変更する (Kong *et al.*, 2011) などの方法が用いられている。

全く異なる光学系として、共焦点顕微鏡を用いた研究例も挙げられる (Krummel *et al.*, 2013)。本実験の光学系では z 方向分解能がシート光厚さによって規定されるのに対し、共焦点光学系は被写界深度が小さく、焦点が合う範囲が極めて狭いために z 方向の高分解能が実現できる。このため、本実験で用いたガラス粒子よりも直径のオーダーが 1 桁小さい $50\text{ }\mu\text{m}$ 程度の粒子充填層も可視化対象にできるが、可視化範囲も狭くなる。また、顕微鏡の対物レンズを用いるため、レンズと可視化対象との距離 (作動距離) が極めて短く、多孔質モデル内部の流れ場を可視化するには可視化容器の設計に工夫が必要である。

6.2 物性値の変異性

原油回収過程を想定した実験においては、固相に対する濡れ性も重要なパラメータとなる。本実験で用いた FCD100 は撥水性であり、濡れ性を変えるためには表面の改質が必要となる。ガラス表面にコーティング剤を塗布すれば濡れ性は容易に変化するが、コーティング剤の屈折率をガラスと一致させなければ塗膜層で光の散乱が生じてしまうため、実用的には難しいと予想される。一方、ガラス表面はプラズマ表面処理 (桑畑ら, 2009) で親水化することが知られており、コーティング剤のような塗膜を形成せずに濡れ性を制御する有効な手法であると考えられる。

また、本実験ではイオン系界面活性剤を用いたため、水の屈折率マッチングにスクロースを用いたが、 Na^+ イオンによる影響を受けにくい界面活性剤を用いる場合は、一般的に多用されている NaI でも屈折率マッチングが可能である。その場合、スクロースと NaI の比率を変えれば、水相の粘性を制御しながら屈折率マッチングができるため、易動度をパラメータとした実験も実現できる。

6.3 EOR の他の攻法への拡張性

EOE では CO_2 攻法や熱攻法が多用されており、これらの系に本手法を適用することも考えられる。この場合、超臨界 CO_2 や蒸気は屈折率がほとんど制御できないため、油相と固相に屈折率を合わせることはできない。しかし、固相 / 油相間の屈折率マッチングは維持できるため、 CO_2 や蒸気の部分で光が屈折するものの、油層内での浸透フロ

ント部分でフィンガリングが生じる様子など、比較的マクロな流れ場は十分に観察できると考えられる。

7. 結 言

本研究では、EOE における油層内で生じている原油回収過程の基礎的現象を観察するため、三相屈折率マッチング法を用いて多孔質内の二相流をミクロスケールかつリアルタイムに可視化する技術を開発した。固相、水相、油相の屈折率を合致させるとともに、蛍光染料の添加や微小領域を観察するための最適な光学系を設計することで、油層を模擬した多孔質モデル内の二相流可視化計測を実現した。可視化実験の結果、容器壁面から十分離れた多孔質モデル内部において、空隙内にトラップされた油滴が界面活性剤水溶液によって回収されるプロセスをリアルタイムで可視化することに成功した。さらに可視化画像を用いた定量解析から、回収率の時間変化を調べた結果、初期段階では界面活性剤水溶液の押し出しによって多量の油が回収される一方、その後も油がエマルション化することで緩やかに油の回収が進行している様子が捉えられた。また、本可視化手法の今後の展望についても言及し、三次元可視化手法への拡張性を示した。

引 用 文 献

- Bora, R., Maini, B. B. and Chakma A., 2000 : Flow Visualization Studies of Solution Gas Drive Process in Heavy Oil Reservoirs With a Glass Micromodel. *SPE Reservoir evaluation & Engineering*, 3 (3), 224–229.
- Budwig, R., 1994 : Refractive index matching methods for liquid flow investigations. *Experiments in Fluids*, 17, 350–355.
- Farajzadeh, R., Andrianov, A. and Zitha, P. L. J., 2010 : Investigation of Immiscible and Miscible Foam for Enhancing Oil Recovery. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 49 (4), 1910–1919.
- Fontenot, M.M. and Vigil, R.D., 2002 : Pore-Scale Study of Nonaqueous Phase Liquid Dissolution in Porous Media Using Laser-Induced Fluorescence. *Journal of Colloid and Interface Science*, 247, 481–489.
- Gajbhiye, R.N. and Kam S. I., 2011 : Characterization of foam flow in horizontal pipes by using two-flow-regime concept. *Chemical Engineering Science*, 66, 1536–1549.
- Guillen, V.R., Carvarho, M.S. and Alvarado V., 2012 : Pore Scale and Macroscopic Displacement Mechanisms in Emulsion Flooding. *Transport in Porous Media*, 94, 197–206.
- Hirasaki, G., Miller, C. A. and Puerto, M., 2011 : Recent Advances in Surfactant EOR. *SPE Journal*, 16 (04), 889–907.
- Krummel, A.T., Datta, S. S., Stefan Münster, S. and Weitz, D.A., 2013: Visualizing Multiphase Flow and Trapped Fluid Configurations in a Model Three-Dimensional Porous Medium. *American Institute of Chemical Engineering*, 59 (3), 1022–1029.
- 桑畑周司, 大山龍一郎, 2009 : 大気圧プラズマジェッ

トによる石英ガラス表面の超親水化, 表面科学, **30**(3), 174–179.

Liu, Y., Zhao, Y., Zhao, J. and Song, Y., 2011 : Magnetic resonance imaging on CO₂ miscible and immiscible displacement in oil-saturated glass beads pack. *Magnetic Resonance Imaging*, **29**(8), 1110–1118.

大瀬戸一仁, 岡部博, 岡津弘明, 鈴木正義, 2007 : アブダビ炭酸塩岩油田の水攻法挙動に関するコア分析からの考察. 石油技術協会誌, **72**(6), 594–600.

Riazi, M., Sohrabi, M. and Jamiolahmady M., 2011 : Experimental Study of Pore-Scale Mechanisms of Carbonated Water Injection. *Transport in Porous Media*, **86**, 73–86.

Stöhr, M., Roth, K. and Jähne, B., 2003 : Measurement of 3D pore-scale flow in index-matched porous media. *Experiments in Fluids*, **35**, 159–166.

Tayal, P. and Narayan K. A., 1990 : Visualization of water and surfactant floods in oil-saturated porous media. *Experiments in Fluids*, **9**, 337–344.

Uemura, S., Kataoka, R., Tsushima, S. and Hirai, S., 2013 : High-Resolution X-Ray Computed Tomography of Liquid CO₂ Permeation in Water-Saturated Sandstone. *Journal of Thermal Science and Technology*, **8**(1), 152–164.

Wellington S. L. and Vinegar H. J., 1987 : X-ray computerized tomography. *Journal of petroleum technology*, **39**(8), 885–898.

Kong, X.-Z., Holzner, M., Stauffer, F. and Kinzelbach, W., 2011 : Time-resolved 3D visualization of air injection in a liquid-saturated refractive-index-matched porous medium, *Experiment in Fluids*, **50**, 1659–1670.