ポリマー水溶液の多孔質媒体内流動における振動効果の解析

田中館忠夫*・オマール・アブデルカリム**・山崎 豊彦**

(平成 3 年 5 月 29 日受付, 4 年 1 月 29 日受理)

Quantitative Analysis of Density Vibration of Polymer Solution Flowing through Porous Media

By

Tadao TANAKADATE, Omar ABDELKARIM and Toyohiko YAMAZAKI

Abstract: In this paper, vibration theory of elastic body is applied as an analogy to the quantitative analysis of resistance factor of polymer solution measured when it flows through porous media.

Resistance against flow of polymer solution through porous media is not caused only by viscosity of polymer solution, but also affected by the energy dissipation by experiencing rarefaction and compression of polymer solution while flowing alternately in the throat connecting pores and in the open pore spaces. Euler Equation is modified to express such elastic resistance of polymer solution caused by the oscillation of normal stress in the fluid. Flow equation comprised of both Euler Equation and Darcy Equation is introduced to calculate both elastic and viscous resistances against flow through porous media. New equation is applied successfully to demonstrate the dilatant flow behavior of polymer solution in the flooding experiences through a capillary tube packed by glass beads and through Berea sand cores.

Diffusion equation modified to express the vibration effect of viscoelastic fluid is applied to solve the pressure loss of polymer solution flowing through porous media. Quantitative analysis of the resistance factor of flow of polymer solution through porous media is presented by the use of analytical solution of diffusion equation.

1. 緒 言

前報¹⁾では、ポリマー水溶液が多孔質媒体内を流動する場合の流動抵抗として、ポリマー水溶液の粘度による摩擦抵抗の他に、流路の断面積が変わることに起因する弾性抵抗が新たに加わることを指摘した。そこでは、流動方向にかかる垂直応力の振動に起因する弾性抵抗を、管径の異なる毛細管をつないだ流路内定常流動、およびガラスビーズを詰めた毛細管内定常流動の圧力損失について定量的に計算した。本論文では、引き続きポリマー

水溶液をガラスビーズを詰めた毛細管、およびベレア砂岩コアを通した場合の非定常流動について、拡散方程式を用いて定量的に解析することを試みた。

ポリマー水溶液がガラスビーズを詰めた毛細管や岩石コアのような多孔質媒体内を流動する時は、孔隙径の大きな部分（孔隙空間）と孔隙空間をつなぐ径の小さい部分（ストロート）を連続して流れるため、水溶液は膨脹と圧縮を繰り返し、前報¹⁾でも述べた通り、流速も密度も周期的な変化を受ける。流速が大きい場合には、ポリマー水溶液は水や油等の圧縮率の小さい流体と異なって大きな圧縮性を持つ弾性体としての性質を現すため、この周期的変化を受けて弾性振動をすることになる。ポリマー水溶液が多孔質媒体内を流れる時に、孔隙空間部分やストロート部分において受ける密度の振動は、あたかも

* 住友石油開発株式会社

** 早稲田大学 理工学部

弾性波の振動と同様の現象として近似できる。外的な衝撃による密度流としての弾性波が、媒体を構成する分子を振動させて擾乱することによって熱エネルギーを失って減衰する過程は、ポリマー水溶液が振動流として失っていく弾性エネルギーの損失に対応している。従って、弾性波の振動理論の類推から、このような弾性流体の多孔質媒体内の圧力損失を解析することは有効であると考えられる。

ポリマー水溶液の弾性流体としての挙動にとって最も重要な要素として、弾性挙動に特徴的な時間遅れを表す緩和時間は次式で与えられる¹⁾。

$$\lambda = \frac{\mu_0 C_t}{\alpha} \quad (1)$$

ここで、 λ は緩和時間、 μ_0 と C_t とそれぞれ流体のゼロシヤ粘度と複合圧縮率を示す。 α は流体の剛性率と圧縮率の関係を表す比例定数である。

これまで、このようなポリマー水溶液の弾性体としての挙動について、毛細管内流動のような流路径の一定な媒体の中での圧力損失、粘度変化については数多くの研究が行われたが、本研究の対象となっているような多孔質媒体内流動に関する研究は限られている。前報では、ポリマー水溶液の多孔質媒体内の定常流動について、比較的簡単な流路変化モデルによる垂直応力と密度変化の関係を使った数値解析を試みてきたが、本報ではこれまでの成果を基礎として弾性体の振動理論との類推から拡散方程式の非定常流解析を求める方法で解析した。

2. ポリマー水溶液の振動流

ポリマー水溶液をガラスビーズを詰めた毛細管、あるいは岩石コアのような多孔質媒体内に流す時、溶液の通る流路はガラスビーズや岩石を構成する砂岩粒子の大きさによって規定される。つまり、孔隙半径、あるいは孔隙間スロートの広さによって決定される。いま、ガラスビーズや砂岩粒子を半径 r を持つ球によって近似し、多孔質媒体がFig. 1(a)に示すように、この球を正方充填して作られていると仮定して孔隙間流路の断面積の変化を求めている。流れの方向を x 軸の正方向にとり、この流路断面積の変化を求めると次式のように表される。

$$S = (4 - \pi)r^2 + \pi(2mr - x)^2 \quad (2)$$

ただし、 m は正方充填されている粒子の入口からの個数である。流路の断面積 S は、 m が奇数、即ち $x = (2n-1)r$ および $x = (2n+1)r$ のとき、最大値 $S_{\max} = 4r^2$ となる。また、 m が偶数、即ち $x = 2nr$ のとき、最小値 $S_{\min} = (4 - \pi)r^2$ となる。この関数の様子は

Fig. 1(b)に示す通りである。Fig. 1(b)からもわかるように、このようにして求められる孔隙流路の断面積の変化は波形になっているため、この流路を通して流れるポリマー水溶液も必然的にこの形状に沿って波動しながら流れる。(2)式で与えられる流動経路は、孔隙空間の最大面積をとる点で微分不可能であり、今後の数学的取り扱いが不便であるため、Fig. 1(b)に点線で示すような正弦曲線によって近似すると、 x 軸上の断面積の変化は次式で与えられる。

$$S = \pi r^2 \sin\left(\frac{\pi x}{d}\right) + S_{\min} \quad (3)$$

ここで d はガラスビーズ、あるいは砂岩粒子の直径($=2r$)を表す。この連続関数による近似によっても最大、最小断面積は変わらず、これらの点における流速は変わらない。

このようにして与えられる流動経路を通じて、一定体積流量 q を与えると、ポリマー水溶液がこの流路の孔隙空間から孔隙空間までの一波長を流れるのに要する周期 τ と角速度 ω が次のように求まる。

$$\tau = \frac{d^3}{2q} \quad (4)$$

Fig. 1(a) Porous-media model.

Fig. 1(b) Velocity oscillation through porous media.

$$\omega = \frac{4\pi q}{d^3} \quad (5)$$

角速度は流量 q に比例し、ガラスビーズあるいは砂岩粒子の直径の3乗に反比例することがわかる。

ここで、ガラスビーズを詰めた毛細管や岩石コア全体中を流れるポリマー水溶液の流量 Q と (5) 式で使ったひとつの孔隙空間を流れる流量 q との関係は、毛細管や岩石コアの断面に含まれるガラスビーズ、あるいは砂岩粒子の数と同数の孔隙空間が含まれるものとして次式で与えられる。

$$q = \frac{d^2 Q}{A} = d^2 U_D \quad (6)$$

ただし、 A は毛細管、あるいは岩石コアの断面積を表す。 U_D はコア内流動時のダルシー流速とする。

(6) 式を (5) 式に代入すると、最終的に角速度が次のように与えられる。

$$\omega = \frac{4\pi Q}{dA} \quad (7)$$

3. ポリマー水溶液流動解析のための拡散方程式

弾性振動をする流体の流れは、オイラーの運動方程式、流体の連続の式、および流体の状態の式を組み合わせると波動方程式として表される。こうして導かれる波動方程式は、弾性波や音波の伝播を表す波動方程式と同じで、一次元の系では一般に次のように表される。

$$\frac{\partial^2 \rho'}{\partial x^2} = \frac{1}{V^2} \frac{\partial^2 \rho'}{\partial t^2} \quad (8)$$

ここで、 ρ' は弾性体の密度変化、 V は弾性波の伝播速度を表している。

弾性波や音波の伝播速度 V は、媒体の密度変化が波動として伝わる速さを表しており、弾性体としての媒体そのものは動かない。これに対し、ポリマー水溶液の多孔質媒体内流動では、弾性体としての水溶液が流れることによって、多孔質流路にそって密度振動を生ずる。この場合の密度振動も平均流速からの流速変動も (8) 式を満たす挙動をすることが予想される。但し、この場合は弾性波の振動と異なって、流速変化と密度変化は、位相を半周期ずらした反比例関係にあることが分かる。ポリマー水溶液の圧縮率 C は、圧力変化に対する密度変化の関係から次のように定義される。

$$\rho = \rho_0 \exp(C \Delta P) \quad (9)$$

但し、 ρ_0 は基準圧力 P_0 における流体密度を、 ΔP は基準圧力との差 ($P - P_0$) を表す。

この関係から、流体が多孔質媒体を流れるとき、第2節に述べた通り、流路の断面積の変化に伴って流速が変

化することにより、圧力も振動していることになる。特に、孔隙空間と孔隙空間を結ぶスロート部分では流速が極めて大きくなるため、その部分の圧力ポテンシャルは極めて小さくなり、流体密度も (9) 式に従って小さくなる。即ち、弾性波の振動と同じように多孔質媒体中を流れる流体では、運動エネルギーと圧力で代表されるポテンシャル・エネルギーが交互に入れ代わりながら流動することになる。

特にポリマー水溶液のように弾性の大きい流体が多孔質媒体内を流動するときに考慮にいれなければならないことは、弾性流体が孔隙空間と孔隙空間の間のスロートの部分で、このような激しい流速変化、あるいは密度変化を受けるときに生ずる応力緩和現象がある。流路が急激に狭まって流速が極めて大きくなるとき、密度変化が即座に対応できないため遅れ遅れが起って瞬間的に極低密度状態が生まれ、これを通常の密度状態に戻すまでの間に弾性エネルギーの損失が起こる。既に、前報¹⁾で導入した通り、この緩和時間の存在によって起こる瞬間的密度低下は、瞬間的に見掛けの圧縮率が大きくなるかのような現象として、動的圧縮率、あるいは時間圧縮率 C_t と呼ばれる新しい特性係数の導入によって表される。これに対して、これまで (9) 式で扱ってきた圧縮率 C は静的圧縮率と呼ばれるものである。このふたつの圧縮率の入れ代わる関係は、振動の角速度 ω と弾性流体の緩和時間 λ の関数として次のように表される。但し、ここでは前報で用いたずり速度の代わりに、多孔質媒体のような連続した振動流に適用するために、ふたつの圧縮率の入れ代わりを判断するパラメーターとして、振動流の角速度 ω を用いる。

$$C_t = C \frac{1 + \omega^2 \lambda^2 (C_t / C)^2}{1 + \omega^2 \lambda^2 (C_t / C)} \quad (10)$$

(10) 式右辺の因子となっている角速度 ω と緩和時間 λ の積 $\omega \lambda$ は、周期 τ を用いて書き直すと $2\pi \lambda / \tau$ と表され、この項が緩和時間と密度振動の周期との比になっていることがわかる。即ち、緩和時間が振動の周期を越えるとき、 $\omega \lambda > 1$ の状態が生まれ、動的圧縮率が大きく影響して複合圧縮率 C_t を上げることがわかる。逆に、緩和時間が周期に比べて充分小さいとき、 $\omega \lambda \approx 0$ となり、複合圧縮率は常に静的圧縮率と等しくなる。従って、水や油のように非弾性とみなせる流体では複合圧縮率の概念を使う必要はないことになる。

この新たな複合圧縮率 C_t を導入すると、弾性流体の持つ緩和特性によって、孔隙空間と孔隙空間をつなぐスロートの部分で、静的圧縮率の値から得られるより急激な圧力降下が生じる¹⁾。この余剰圧力降下は、(10) 式から明らかな通り、流速が大きくなり、さらに緩和時間が長い

ほど大きくなる。この弾性流体の持つ応力緩和現象により、流体の弾性エネルギーの損失およびそれによる圧力損失が起こる。

一方、非常に小さな圧縮率を持つ粘性流体の多孔質媒体内流動は、運動方程式としてオイラーの式の代わりにダルシーの式を使って、連続の式、状態の式と組み合わせた拡散方程式によって次のように表される。

$$\frac{\partial^2 P}{\partial x^2} = \frac{1}{D_f} \frac{\partial P}{\partial t} \quad (11)$$

ここで、 D_f は拡散係数を表し、多孔質媒体の場合は次の式で与えられる。

$$D_f = \frac{K}{\phi \mu C} \quad (12)$$

K は浸透率、 ϕ は孔隙率を表す。

粘弾性流体に対しては、(8) 式と (11) 式の両式が同時に適用される。従って、粘弾性流体に用いる運動の式は、オイラーの式とダルシーの式を併せた次の形をとる。

$$\frac{\partial P}{\partial x} = - \left(\frac{\mu}{K} + \rho \frac{\partial U}{\partial x} \right) U_D \quad (13)$$

多孔質媒体内における流速 U の変化は、ガラスビーズ、あるいは砂岩粒子の間を通る孔隙空間と孔隙空間を結ぶ流路の形状によって規制されるため、右辺第2項の流速の流動方向での勾配は、ガラスビーズ、あるいは砂岩粒子の球径 d を用いて次のように与えられる。

$$\frac{\partial U}{\partial x} = - \frac{4q}{d^3} \frac{\partial d}{\partial x} \quad (14)$$

従って、(13) 式は次のようになる。

$$\frac{\partial P}{\partial x} = - \left(\frac{\mu}{K} - \frac{4\rho q}{d^3} \cdot \frac{\partial d}{\partial x} \right) U_D \quad (15)$$

(12) 式内の易動度 K/μ を新たに次のように定義すれば、(15) 式はダルシーの式と同形にとり扱えるように

なる。

$$\frac{\mu'}{K'} = \frac{\mu}{K} - \frac{4\rho q}{d^3} \frac{\partial d}{\partial x} \quad (16)$$

(16) 式の関係を使って、流体の振動に伴う弾性エネルギーの損失によって、多孔質媒体内を流れる流動抵抗がどのように変化するかをプロットしたのが Fig. 2 である。Fig. 2 の縦軸は易動度比 $(K'/\mu')/(K/\mu)$ を表している。この図から、新たに定義した易動度 K'/μ' が流速と多孔質媒体を構成するガラスビーズ、あるいは砂岩粒子の径の関数になっているのがわかる。ここで、(12) 式に代わる粘弾性流体の多孔質媒体内流動現象を表す係数として、次のような拡散係数を導入する。

$$D_f' = \frac{K'}{\phi \mu' C_t} \quad (17)$$

従って、(10) 式の圧縮率と (16) 式の易動度を用いて、(11) 式の拡散方程式を解くことによって、粘弾性流体の多孔質媒体内流動の非定常圧力挙動を計算することができる。

4. 多孔質媒体内流動に関するレイノルズ数とデボラ数

ポリマー水溶液流動の流動媒体毎の違いを比較する場合に基準となるのは、ポリマー水溶液に加えられている応力であり、流速の対比である。この流速を表すのに一般的に使われているのは、慣性力と粘性力の比を無次元数として定義したレイノルズ数である。多孔質媒体内流動に関するレイノルズ数は次式で定義する。

$$Re = \frac{d U_D \rho}{\mu (1 - \phi)} \quad (18)$$

この式を岩石コアに適用する時に問題となるのは、多孔質媒体としての岩石を構成する砂岩粒子の平均直径 d の値の求め方である。実験に用いた砂岩コアと同様のベレア砂岩を砕いて電子顕微鏡を用いて砂岩粒子径を測定すると、Fig. 3 のように得られる。

多孔質媒体内流動において、流体の流動抵抗を評価する場合の定量化のために使われる値としては、抵抗係数 (Resistance Factor) が測定されている。ポリマー水溶液の抵抗係数は、同じ岩石コアを用いて水だけを流した時の流動抵抗とポリマー水溶液を流した時の流動抵抗の比として定義される。実験ではこの抵抗係数を、それぞれの流体について岩石コアの出入口間で測定される圧力差を流量で割った値の比から次のように求める。

$$RF = \frac{\Delta P_p / Q_p}{\Delta P_s / Q_s} = \frac{\mu_p A_p}{\mu_s A_s} \quad (19)$$

ここで、 A_s , A_p はそれぞれ溶媒、ポリマー水溶液の抵抗定数 (Resistance Coefficient) を表す^{2), 3)}。

Fig. 2 Effect of energy dissipation by velocity oscillation on transmissibility of polymer solution through porous media.

Fig. 3 Particle size distribution of Berea sandstone core.

(19) 式に使われる抵抗定数 Λ は、粘性流体の示す摩擦係数とレイノルズ数の積として次の式で定義される。

$$\Lambda = f \cdot Re = \frac{d^2}{\mu U_D} \frac{\phi^3}{(1-\phi)^2} \frac{\Delta P}{L} \quad (20)$$

この式に使われる摩擦係数 f は、パイプ内流動の摩擦係数に習って次の式で定義されるものである。

$$f = \frac{d}{\rho U_D^2} \frac{\phi^3}{1-\phi} \frac{\Delta P}{L} \quad (21)$$

さらに、(20) 式の抵抗定数にダルシーの式を適用すると、抵抗定数は流体の種類に関係なく多孔質媒体の性質のみを表す次のような簡単な式に行きつく。

$$\Lambda = \frac{d^2}{K} \frac{\phi}{(1-\phi)} \quad (22)$$

即ち、抵抗定数は岩石コアの粒子径、浸透率、および孔隙率によって決まる定数となる。従って、(20) 式～(22) 式が成り立つ系においては、抵抗定数は流体に関わらず一定になり、(19) 式の抵抗係数 (RF) に使われる Λ_p/Λ_s は常に 1 になるため、測定された抵抗係数はポリマー水溶液と溶媒の粘度の比 μ_p/μ_s を表していることになる。

さらに、(22) 式に多孔質媒体の浸透率と孔隙率の関係を表す Blake-Kozeny, Carman-Kozeny 等の経験式を適用すると、層流域では抵抗定数はいつも一定の値をとることが示される。

$$\Lambda = 150 \sim 180 \quad (Re < 10) \quad (23)$$

抵抗定数の幅は、Kozeny 係数を 4～5 の範囲に取る場合に対応して変化している。

Table 1(b) に示す三種類のサイズの違うガラスビーズを詰めた毛細管について得られている測定値から、(22) 式を用いて抵抗定数を求めてみると、141～172 となる。一方、ビーズ径から Kozeny 係数を 25/6 として Blake-Kozeny の式を用いて求めた浸透率を使うとこの値は常に 150 と一定になる。この実測値のばらつきは、塩水を通して測定した浸透率がビーズ径の分布などが原因となって Blake-Kozeny の関係から得られる浸透率と異なるせいである。さらに、ガラスビーズを詰めた毛細管を用いた実験による測定値から (20) 式を用いて求めた抵抗定数を、レイノルズ数に対してプロットした結果を Fig. 4 に示す。この塩水を通して求めたニュートン流体としての関係と同様に、ガラスビーズを詰めた毛細管内をポリマー試料 MS 7812 で作った 1000ppm 濃度のポリマー水溶液を流した場合の抵抗定数とレイノルズ数の関係を測定した結果も Fig. 4 にプロットした。ガラスビーズのサイズが 600 μm 、300 μm と大きい場合には、(19) 式の抵抗係数を構成する Λ_p/Λ_s の値が 1 になる関係はあるレイノルズ数の範囲内では確保されている。一方、ガラスビーズの径が 87 μm の場合には、測定されたレイノルズ数の範囲内では、もはやこの関係が成り立つ部分はなく、 Λ_p/Λ_s の値が 1 になる関係が成り立たないことが理解できる。ポリマー水溶液のような粘弾性流体の振動流による圧力損失への影響は、多孔質媒体を構成する岩石粒子のサイズが小さいほどはっきりと現れることを示している。

Fig. 4 Resistance coefficient of flow through glass beads packed capillary tube.

Fig. 5 Resistance coefficient of flow through Berea sandstone.

ガラスビーズを詰めた毛細管を用いて行ったと同様の実験をベレア砂岩コアを用いて行った結果についても Fig. 5 にプロットしてみた。ここで、Fig. 3 で求めたベレア砂岩の平均粒子径を用いて (22) 式により計算した抵抗定数は 210~708 となり、(23) 式で与えた値よりかなり大きくなっている。ベレア砂岩のような岩石コアでは Blake-Kozeny の関係が成り立たなくなっているため、このような大きな差が表れてくることになるが、レイノルズ数や抵抗定数の計算に用いる岩石粒子径の求め方が難しくなっていることを示している。また、ベレア砂岩では、ポリマー分子の吸着による水力半径の変化や浸透率の低下による効果も問題となる。なお、Fig. 5 では、岩石コア内に塩水を流した場合の抵抗定数はひとつの流速についてしか測定していないため、図中右下にその値を示してある。ポリマー水溶液を流して測定した抵抗定数との関係からは、ばらつきはあるものの Λ_p / Λ_0 の値が一定になるレイノルズ数の範囲が示されているようにみえる。しかし、岩石コア内流動については、正確に測定されていないパラメーターが多くなり、これまで述べた理論式がガラスビーズを詰めた毛細管内の流動について行ったようにうまく適用できないことがわかる。

以上は、通常の粘性流体の多孔質媒体内流動を対象としたレイノルズ数についての説明であるが、多孔質媒体内を流れる振動流の結果として現れるダイラント流体としての挙動を調べるのに便利な指標として、レイノルズ数と同様の無次元数として、デボラ数がある。デボラ数は、ポリマー粒子の粘弾性を表す緩和時間 λ と伸び速度 ε を掛けたものとして、次式で定義される。

$$De = \lambda \cdot \varepsilon \quad (24)$$

ここで、伸び速度 ε はレイノルズ数を用いて、次式で評価する。

$$\begin{aligned} \varepsilon &= \frac{\beta U_D}{d} \\ &= \frac{\beta (1 - \phi) \mu Re}{\rho d^2} \end{aligned} \quad (25)$$

定数 β は多孔質媒体を構成する粒子のパッキング状態を示すパラメーターで、球が正方格子状に充填されている場合には $\beta = 1.7$ 、あるいは最密充填されているような場合には、 $\beta = 6.3$ となる値である。ガラスビーズのような同じサイズを持つ完全球体のパッキングでは、それぞれの充填方法毎に孔隙率 ϕ も 47.6% あるいは 25.9% と与えられる

ここで (25) 式で評価される伸び速度は、多孔質媒体内のスロートと孔隙空間の間を一つのサイクルとして考える密度変化距離をポリマー水溶液が通過する時間の逆数を意味する。これは、(7) 式で表される振動角速度と同じものを表している。このため、デボラ数はこの圧縮、膨脹サイクルの周期時間 τ と緩和時間 λ の比を表しており、前節で述べた $\omega \lambda$ と同じように、この圧縮、膨脹サイクルの周期が緩和時間に比べて十分に長い場合、即ちデボラ数が小さい間は、ポリマー水溶液はスロートと孔隙空間の流路に沿って密度変化を対応させるのに十分な時間を与えられるため、流動に抗する圧力損失は壁との摩擦による粘性損失だけになる。逆に、この周期時間が緩和時間に比べて短い場合は、流動方向における垂直応力変化に伴う密度変化の対応に十分な時間を与えられず、次の圧縮、膨脹サイクルに移っていくため、その間に極低密度状態が発生し、粘性損失の他に弾性エネルギー損失を伴い、非常に大きな圧力損失が測定されることになる。また、この場合、同時に見られる現象として、この応力緩和が充分に行われないために、流動状態は常に非定常な変化内に置かれることになり、多孔質媒体が長ければ長い程、非常に長い間非定常の圧力上昇を続ける現象が観察されることになる。

デボラ数が意味しているのは、これまでに述べてきた、振動によってポリマー水溶液にかかる圧力変化による流動抵抗と摩擦抵抗を起こす粘性抵抗の比であり、流動によって生ずる圧力損失が、この二つの効果によってどの割合で分担されるのかの比率を表すことになる。即ち、デボラ数が大きくなればなるほど、振動による弾性エネルギー損失が粘性抵抗を上回ることを意味する。垂直応力とせん断応力の間の相関関係は、これらの二つの応力の比をとって次のように与えられている⁴⁾。

$$\frac{\sigma_{xx} - \sigma_{rr}}{\sigma_{xx}} = 2 \lambda \gamma \quad (26)$$

ここで、 σ_{xx} と σ_{rr} はそれぞれ x 方向 (流れの方向)、およびそれと直交する方向での垂直応力を表し、 σ_{xx} は

Fig. 6 Resistance coefficient of flow through porous media.

x 方向でのせん断応力を表す。

ずり速度 γ として GOGARTY⁵⁾ の提唱した式を用いると、(26) 式の右辺は次のようになる。

$$2\lambda\gamma = \frac{12\sqrt{25/3}}{\beta} \frac{3n+1}{4n} \frac{1-\phi}{\phi^2} De \quad (27)$$

(27) 式によって、この二つの応力の比が、先に (24) 式で定義したデボラ数で与えられることが分かる。この比が 1 になる点が、垂直応力とせん断応力が等しくなる流速で、ずり速度がこの値を越えると垂直応力による弾性エネルギー損失の方が、せん断応力による圧力損失より重要になってくる。この限界ずり速度は $\gamma = 1/2\lambda$ と表され、(27) 式に $n=0.654$, $\beta=6.3$, $\phi=0.259$ を与えるとデボラ数 $De=1.9 \times 10^{-2}$ が得られダイラタント流動が卓越する流速域は、 $De > 2 \times 10^{-2}$ の範囲として与えられることになる。

Fig. 4, Fig. 5 における抵抗定数の測定値をレイノルズ数の代わりにデボラ数を用いてプロットし直すと Fig. 6 のような関係が得られる。ここでは、デボラ数の計算に当たって、前報¹⁾ で求めた緩和時間 λ の値を与えている。デボラ数の採用によって、抵抗定数が上昇に転ずる点がガラスビーズを詰めた毛細管、あるいは岩石コアの場合についても同じようなデボラ数の範囲に集まってくる様子がみられる。

5. 抵抗係数

次に既に第 3 節で述べた、粘弾性流体の多孔質媒体内流動を表す拡散方程式 (11) 式を解いて、解析的に抵抗係数を求めることを試みる。(11) 式に使われている拡散定数 D_f を新しく定義した振動流についての (10) 式の複合圧縮率 C_t と (16) 式の易動度 K'/μ' を用いて表すと、(11) 式は非線型方程式となるため解析的に解くことができない。そこで、第一段階として、拡散係数

Fig. 7 Pressure history record during polymer injection test.
(Core No: TSOR-3-30 Na).

D_f を固定して (11) 式を解いてから、その解析解に (10) 式と (16) 式を適用して多孔質媒体内流動の実測値と比較する手法をとる。

ここで、(11) 式右辺の係数となっている拡散定数を構成するパラメータのうち、 ϕ/K は多孔質媒体の性状を表す定数であり、いずれの流体についても共通である。残りの μC は流体の性状を表す定数であり、(1) 式より $\mu_0 C_t = \alpha \lambda$ となる。つまり、(11) 式によって表される圧力の拡散現象には、ポリマー水溶液の持つ粘弾性効果が含まれることになる。Fig. 7 は、ポリマー水溶液を岩石コア内へ流した場合のコア両端差圧の測定記録を示す。図中の (a) から (b) へ変わる点において、塩水からポリマー水溶液へ圧入流体が切り換えられている。この (b) の領域にみられる差圧の過渡応答現象は、拡散係数のパラメータ $\alpha \lambda$ の表す緩和時間によって支配されていると考えられる。Fig. 7 の (a) の塩水だけを流した部分でみられるように、この実験に用いたコアは直径が 2.435cm、長さが 6.923cm で孔隙率 18.9% と小さな孔隙容積しかもたないため、圧入を開始すると瞬時に一定の差圧に達するのが普通である。Fig. 7 の (b) にみられるような同じ容積の流体が 2~3 時間に渡って圧力過渡応答をする現象はポリマー水溶液のような粘弾性流体だけに極めて特徴的な現象として捕らえられる。この現象は、ポリマー水溶液の持つ動的圧縮率 C_t の大きさによって与えられるパラメーター $\mu_0 C_t$ の働きとして表されることになる。つまり、拡散係数 D_f を小さくしたことにより、圧力変化の拡散が小さくなり圧力が伝播し難くなったことを意味する。

(11) 式をガラスビーズを詰めた毛細管や岩石コアを用いた流動実験を行っている条件を初期条件、境界条件として与えてフーリエ変換を用いて解析的に解くと圧力変化として次式が得られる。

$$P(x, t) = \frac{2\mu QL}{\pi^2 KA} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\{1 + (-1)^{n+1}\}}{n^2} \times \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 t}{D_f L^2}\right) \right\} \times \left\{ \cos\left(\frac{n \pi x}{L}\right) - \cos\left(\frac{n \pi}{2}\right) \right\} \quad (28)$$

この解を用いてガラスビーズを詰めた毛細管、あるいは岩石コアの入口と出口の圧力差の時間変化を求めると次式が得られる。

$$\Delta P = \frac{2\mu QL}{\pi^2 KA} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\{1 + (-1)^{n+1}\}}{n^2} \times \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 t}{D_f L^2}\right) \right\} \times \{1 - \cos(n \pi)\} \quad (29)$$

こうして得られた圧力差を実験で測定したガラスビーズを詰めた毛細管や岩石コア両端の間の圧力差と比較するために、拡散係数 D_f の値として、粘弾性流体について (17) 式から得られる新たな拡散係数 D_f' を適用する。ポリマー水溶液のような粘弾性流体の振動流については、既に Fig. 2 でみてきた通り、流速が大きくなり角振動数 ω が大きくなっていくと、この拡散係数 D_f' は小さくなる。つまり、この圧力変化の過渡応答時間が大きくなって非定常状態が長く続くことがわかる。これは、小さな径を持つガラスビーズを詰めた毛細管や岩石コア内をポリマー水溶液を流す実験で得られる入口、出口間の差圧変化が長い時間定常値に達しない事実を良く説明している。

さらに、(29) 式の非定常流状態から時間が充分経って ($t \rightarrow \infty$) 定常状態に達した場合の圧力差は次式で与えられる。

$$\Delta P(t \rightarrow \infty) = \frac{\mu QL}{KA} \quad (30)$$

この定常状態での圧力差/流量 $\Delta P(t \rightarrow \infty)/Q$ を用いると、(19) 式の抵抗係数は次のようになる。

$$RF = \frac{\left(\frac{\mu'}{K'}\right)_p}{\left(\frac{\mu}{K}\right)_s} = \frac{\mu_p}{\mu_s} - \frac{K}{\mu} \frac{4\rho q}{\pi d^3} \frac{\partial d}{\partial x} \quad (31)$$

これによって、第4節で議論してきたように、抵抗係数はデボラ数が $10^{-2} \sim 10^{-1}$ となるような流速範囲内では、(31) 式右辺第一項だけで表されるようにポリマー水溶液と溶媒自身の粘度の比になっているが、それより流速が大きくなる部分では (31) 式右辺第二項が働き始めることによってこの関係から離れていくことが定量的

にも裏付けられる。

6. 実測値とのマッチング

前節までに得られた理論計算式を、ポリマー水溶液をガラスビーズを詰めた毛細管内、およびベレア砂岩コア内を流して行った実験の結果に適用してその妥当性を検討した。

実験に使われたガラスビーズの大きさ、毛細管、岩石コアの直径、長さ等の諸元は Table 1 に整理した通りである。岩石コアの粒子径は、流動実験に使ったものと同種類のベレア砂岩を砕いて電子顕微鏡で観察、測定した粒子径分布の最頻値とした。

粒子径 $87 \mu\text{m}$ のガラスビーズを詰めた毛細管によるポリマー水溶液流動実験の測定結果を Fig. 8 に破線で示す。この実験に用いた溶液は、ポリマー試料 MS 7812 の 1000ppm 水溶液である。この実験結果から、流速が大きくなっていく場合に、振動流の効果によって急激に差圧が加速度的に増加していく様子が分かる。この差圧の増加傾向は粘度変化だけではうまく説明できない。この測定例では、圧入流速を 0.00053, 0.00061, 0.00088, 0.00109 cc/s と 4 段階に変化させている。この場合、定常状態での差圧は各々、0.82, 1.06, 2.07, 3.28 Kg/cm² と変化しており、これを粘度変化だけで表そうとすると、各流速に対して粘度が 7.5, 9.0, 12, 15 mPa・s と増加したかのように計算される。一方、本論文で提案した方法で、(29) 式を用いて計算を行うと、図中に○でプロットしたように、実験値の傾向をうまくとらえることができる。この計算結果は、易動度の変化を与える (16) 式で、流路の断面積変化の勾配を表す $\partial d / \partial x$ をマッチング・パラメータとしてうまく与えることによって得られる。このことから、ポリマー水溶液の弾性効果による圧力損失を考慮することによって、粘性抵抗は流速の増加によって低下する傾向を残したままでも、流速の増加に伴うダイラタント流動の圧力損失を計算できることがわかる。即ち、孔隙流路が激しく変化するような多孔質媒体については、 $\partial d / \partial x$ の値が極めて大きくなる系として扱うことによって易動度の減少を表すことができる。

Fig. 8 の測定差圧のマッチングにおいて、流速の増加による易動度の減少の他に、もうひとつの重要な点は、各流速変化の度に現れる長い非定常の過渡応答部分の計算である。こちらの現象は、(10) 式で表される複合圧縮率の導入によって、ポリマー水溶液の示す見掛け圧縮率が流速毎に変わることから得られる。マッチングしたケースの圧縮率の値をみると、溶媒だけを流した場合は $4.5 \times 10^{-10} \text{Pa}^{-1}$ ($4.5 \times 10^{-5} \text{atm}^{-1}$) と一定である。一方、

ポリマー水溶液を流した場合は、流速変化に従って $9 \times 10^{-5} \text{Pa}^{-1} (9 \text{ atm}^{-1}) \sim 2.8 \times 10^{-4} \text{Pa}^{-1} (28 \text{ atm}^{-1})$ と変化しており、両ケースに使われた静的圧縮率と動的圧縮率のはっきりした差異を示している。ポリマー水溶液のような粘弾性流体の流動系においては、前報¹⁾で導入した緩和時間から得られる動的圧縮率が大きく働いていることが分かる。この動的圧縮率の導入によって、ポリマー水溶液を多孔質媒体内を流した場合に観測されるような極めて長い過渡応答時間の存在がうまく説明される。

Fig. 8 には、同じ毛細管に塩水だけを流した場合の測定値についても (29) 式によって求めて比較している。当然のことながら塩水だけの流動の場合、Blake-Kozeny の関係から得られる浸透率を用いて、流量変化に伴う差圧変化が充分再現できることが分かる。勿論、実測においても、計算においても殆ど瞬時に差圧は定常状態に達している。このため、図中には、塩水だけを流した場合に計算される差圧については定常値を一点だけプロットして示している。計算と実測による差圧が多少ずれているのは、Blake-Kozeny の関係から求めた浸透率と実測の差圧から求めた浸透率が少しずれているこ

Fig. 8 Matching of pressure difference between inlet and outlet of capillary tube packed with 290-mesh glass beads.

Table 1 Properties of polymer solution and dimensions of capillary tube models and cores.

(a) Properties of Polymer Solution

MS-7812 Mole Ratio	: AAM/AMPS•NA=85/15
Intrinsic Viscosity	: 12.07 dl/g
Molecular Weight	: 4.2×10^6
Polymer Concentration	: 1000ppm
Brine Concentration	: 5000ppm
Relaxation Time	: 0.05s
TSOR-3 Mole Ratio	: AM/DMAA/ANa
Intrinsic Viscosity	: 13.7 dl/g
Molecular Weight	: 9.8×10^6
Polymer Concentration	: 1000ppm
Brine Concentration	: 1000ppm

(b) Dimensions of Glass Beads Packed Capillary Model

Model No.	1	2	3
Beads Diameter (μm)	600	300	87
Length (cm)	15	15	15
Capillary Diameter (cm)	0.2	0.2	0.2
Cross Sectional Area (cm^2)	0.0314	0.0314	0.0314
Porosity	0.393	0.344	0.287
Permeability (μm^2)	395.4	56.8	2.35
Resistance Coeff. (Eq. 22)	150	150	150
Resistance Coeff. (Eq. 20)	172	141	171

(c) Dimensions of Rock Core Samples

Core No.	102	104	202	402
Cross Sectional Area (cm^2)	10.980	11.015	11.187	10.922
Length (cm)	7.465	7.545	7.540	7.625
Porosity	0.201	0.209	0.210	0.201
Permeability (μm^2)	0.242	0.258	0.276	0.781

Fig. 9 Matching of pressure difference between inlet and outlet of Berea sandstone core.

とが原因になっている。

次に、ポリマー試料 TSOR-3 を NaCl 濃度 1000ppm の塩水に溶かして作成した 1000ppm 濃度のポリマー水溶液をベア砂岩コアに通した時に測定された差圧変化の計算例を Fig. 9 に示す。図中には、実験結果が実線で、計算結果は△でプロットしてある。この実験では、先ず溶媒としての塩水を 0.00326 cc/s の流速で流して浸透率を求めた後、 0.00263 cc/s の流速でポリマー水溶液を流して差圧を測定している。この一定流速の測定からだけでも、ポリマー水溶液がベア砂岩内を流動する時には、予め測定されているポリマー水溶液の粘度だけからでは予想されない大きな差圧と長い非定常時間が観察されることがわかる。この実験流速におけるポリマー水溶液の粘度は $13 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ である。Fig. 9 に示したような差圧を計算するためにはこの 5 倍以上の粘度が必要となる。この流動抵抗も岩石コア内での振動流による弾性エネルギー損失によるものと考え、粘度を変えなくても (16) 式による易動度の減少によってうまく計算される。また、このマッチング計算では、岩石コアの孔隙流路の変化勾配の値は極めて大きくとる必要があり、このような岩石コア内流動での振動流が極めて大きい角速度で変化していることを暗示している。岩石粒子の平均径から予想される流路よりも、より複雑に入り組んだ流路変化があることが予想される。このような変化の激しい流動径路を持つ岩石コア内流動では、非常に長い非

定常時間が特徴となって観測される。Fig. 9 に示される 3 時間にも及ぶ圧力の過渡応答時間は、ポリマー水溶液に $3 \times 10^{-4} \text{ Pa}^{-1}$ (3 atm^{-1}) という複合圧縮率を与えて拡散時間を伸ばすことによって計算されている。但し、ここで岩石コアの場合は、ポリマー分子の拡散や岩石粒子表面への吸着等による浸透率の低下等、他の原因が働いていることもわかっているため、必ずしも振動流だけが原因でこの効果が現れていると考えるのは少し無理があることを注意しておく必要がある。

6. 結 言

本研究は、ポリマー水溶液に代表される粘弾性流体を、油層のような多孔質媒体内に注入する時にみられる異常な圧力上昇の原因を考察するために、その流動抵抗の定量的な評価を試みたものである。これまで、圧入流体として使われてきた水のような非圧縮性流体と違って、ポリマー水溶液のような粘弾性流体を用いる場合に、新たに考慮に入れなければならない粘弾性流体の振動流について次のような新しい知見が得られた。

- (1) ポリマー水溶液の多孔質媒体流動においては、弾性流体が孔隙空間と、孔隙空間を結ぶスロート部分とを交互に流れるために、流速の大小を繰り返す振動流が起こる。粘弾性流体の振動流における弾性エネルギー損失は、粘弾性流体に特有の応力緩和現象と関係している。多孔質媒体内における流路断面積の変化に伴う流速振動に対応する流体の密度変化が繰り返される。弾性の大きな流体が密度振動して流れ、ある振動数を越えると弾性エネルギーの損失が起こり、粘性による摩擦損失以外の圧力損失を受ける。この弾性エネルギー損失に影響する緩和時間を決める流体の性質は粘度と圧縮率であり、特に圧縮率の中でも従来測定されていない動的圧縮率の存在は、ポリマー水溶液のような粘弾性流体では今後注目されるべき流体特性と考えられる。
- (2) ポリマー水溶液のような粘弾性流体の多孔質媒体内流動を表す運動方程式として、ダルシーの式とオイラーの式を同時に満たす (15) 式を提案した。また、粘弾性流体の非定常流動挙動は、粘性の他に弾性効果も満たすような拡散方程式の解である必要があるため、拡散方程式にこの運動方程式を適用して得られる解を用いて解析した。
- (3) 粘弾性流体の多孔質媒体内流動において、粘性による摩擦損失の効果は流速に比例して起こり、振動による弾性エネルギーの損失は流速の 2 乗に比例して起こるため、流速が小さい間は、粘性が主な圧力損失の原因となり、流速が大きい範囲では振動が主

な圧力損失の原因となる。このふたつの効果の入れ代わる流速は、垂直応力とせん断応力の比として定義されるデボラ数によって判断される。振動流による垂直応力の効果はデボラ数が $10^{-2} \sim 10^{-1}$ を越えるときに卓越し始める。

- (4) ポリマー水溶液のような粘弾性流体を岩石コアのような多孔質媒体内を流すとき、粘度による摩擦損失の他に、振動流による弾性エネルギー損失が起こり、圧力損失は流速の増大に伴って加速度的に増大する。この現象は、圧入坑井の近傍のように流速の大きい部分で極めて重要な役割を果たすと考えられる。

本論文では、粘弾性流体の多孔質媒体内流動時の非定常流動を定量的に解析することを試みたが、この分野の定量的解析は未だその端緒についたばかりであると言える。このため、今後さらに粘弾性流体特有の流体性状を実測する方法論も含めて、岩石コアを用いた流動実験を繰り返して、本解析法の妥当性を検証していく必要がある。同様の解析は、ポリマー水溶液に対してだけでなく、今後、回収技術の中心となる EOR に係わる流体にも広く適用されるものだけに、さらに広く研究されていくことを期待する。

謝 辞

本研究を行うに当たって、研究協力を頂いた石油公団石油開発技術センター、並びに住友石油開発株式会社に対し、深く感謝します。本研究の実験、報告書作成を通じ研究協力を頂いた早稲田大学理工学部研究科陳炳明君に深く感謝します。

記号の説明

A : 毛細管, あるいは岩石コアの断面積, m^2
 C : 静的圧縮率, Pa^{-1}
 C_i : 動的圧縮率, あるいは時間圧縮率, Pa^{-1}
 C_t : 複合圧縮率, Pa^{-1}
 D_f : 僅少圧縮性流体の拡散係数, m^2/s
 D_f' : 粘弾性流体の拡散係数, m^2/s
 d : ガラスビーズ, あるいは砂岩粒子の直径, m
 f : 摩擦係数
 K : 浸透率, m^2
 K/μ : 粘性流のみの流動係数, $m^2/Pa/s$
 K'/μ' : 粘性流, 振動流を含む流動係数, $m^2/Pa/s$
 L : 毛細管, あるいは岩石コアの長さ, m
 n : レオロジー方程式の指数
 P : 圧力, Pa
 ΔP : 差圧, Pa
 $\Delta P(t=\infty)$: 定常状態での入口, 出口間の差圧, Pa
 q : 孔隙空間流路を流れる流量, m^3/s

Q : 毛細管, あるいは岩石コアを流れる流量, m^3/s
 Re : レイノルズ数
 RF : 抵抗係数 (Resistance Factor)
 r : ガラスビーズ, あるいは砂岩粒子の半径, m
 S : 孔隙空間流路の断面積, m^2
 t : 時間, s
 U : 流路内の平均流速, m/s
 U_D : ダルシー流速, m/s
 V : 弾性波の速度, m/s
 x : 距離, m
 α : 剛性率と圧縮率の関係を示す比例定数
 β : パッキング定数
 γ : ずり速度, s^{-1}
 ε : 伸び速度, m/s
 Λ : 抵抗定数 (Resistance Coefficient)
 λ : 緩和時間, s
 μ : 流体の粘度, $Pa \cdot s$
 μ_0 : ポリマー水溶液のゼロシェア粘度, $Pa \cdot s$
 ρ : 流体の密度, Kg/m^3
 ρ_0 : 基準圧力における流体密度, Kg/m^3
 σ_{xx} : 流動方向での垂直応力, Pa
 σ_{rr} : 流動方向と直交する方向での垂直応力, Pa
 σ_{xr} : 流動方向でのせん断応力, Pa
 τ : 振動流の周期, s
 ϕ : 孔隙率
 ω : 振動流の角速度, rad/s

添 字

p : ポリマー水溶液
 s : 溶媒

参 考 文 献

- 1) 田中館忠夫・オマール・アブデルカリム, 山崎豊彦, 1991: ポリアクリルアミド水溶液の多孔質媒体内流動抵抗の定量的評価. 石技誌, 57(1), p. 1-10.
- 2) KULLCKE, W.M., 1984: Flow Behavior of Dilute Polyacrylamide Solutions through Porous Media.
 1. Influence of Chain Length, Concentration, and Thermodynamic Quality of Solvent. Ind. Eng. Chem. Fundam., 23.
- 3) LIM, T., UHL, J.T. and PRUD'HOMME, R.K., 1986: The Interpretation of Screen-Factor Measurements. SPE Reservoir Engineering, May.
- 4) DAUBEN, D.L. and MENSIE, D.E., 1967: Flow of Polymer Solutions Through Porous Media. JPT, August.
- 5) GOGARTY, W.B., LEVY, G.L. and FOX, V.G., 1975: Viscoelastic Effects in Polymer Flooding through Porous Media. SPE Paper 4025.