

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：12605

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2022～2023

課題番号：22K20402

研究課題名（和文）CO₂地中貯留-石油増進回収への応用を指向した部分混和系流体置換ダイナミクスの解明研究課題名（英文）Elucidating the displacement dynamics with a partially miscible system for application for CO₂ sequestration and enhanced oil recovery

研究代表者

鈴木 龍汰（Suzuki, Ryuta）

東京農工大学・学内共同利用施設等・特任助教

研究者番号：00965692

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：実際の石油増進回収・CO₂貯留を想定した多孔質媒質を模倣した実験系を作成し、部分混和系の流動実験を行った。その結果、部分混和度、換言すれば相分離の大きさ（程度）が石油置換効率やCO₂貯蔵効率に影響することがわかった。さらに、シミュレーションの結果により、詳細な条件を検討できるようになっただけでなく、これまで実験で見られていたが考察が難しかった部分のメカニズム解明に近づくことができた。すなわち、部分混和系を形成する基礎部分を実験・シミュレーションによって補完することができた。さらに種々の実験・シミュレーションにて派生研究も実施し、成果を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本成果は石油をさらに多く回収することだけでなく、地球温暖化の原因の一つとされているCO₂を石油を回収した部分に貯蔵することを目指した研究である。その基礎部分として、石油が存在する地下深くでは高温・高圧な条件になり、そこではCO₂は液体のようになり、石油やCO₂はどのように流れるのかを研究した。さらに、地下深くでの流れの条件を実験室で再現し、そうした液体（部分混和系）の回収率や貯蔵率は何に起因するのかを探索した。その結果、CO₂と石油や水は地下では少し混ざり合うが、その混ざり合いやすさが効率に影響することがわかった。さらにシミュレーションでどうしてそうなるのかを検討している。

研究成果の概要（英文）：An experimental system that mimics a porous medium for actual enhanced oil recovery and CO₂ storage was created, and flow experiments of the partially miscible system were conducted. As a result, it was found that the degree of partial miscibility, in other words, the rate (degree) of phase separation, affects the oil recovery and/or CO₂ storage efficiency. Furthermore, the simulation results not only enabled us to examine the detailed conditions, but also brought us closer to elucidating the mechanism of the part of the system that had been observed experimentally but had been difficult to consider. In other words, we were able to supplement the basic part of the formation of the partially miscible system by experiments and simulations. We have also conducted derivative studies using various experiments and simulations, and were able to obtain good results.

研究分野：流体工学

キーワード：界面流体力学 相分離 部分混和系 Viscous fingering 多孔質媒質

1. 研究開始当初の背景

ある流体で満たされた多孔質媒質内に別の流体を注入し、置換するプロセスは、環境面や工業面において非常に重要である。特に、水を用いて石油を押し出し回収する石油回収法や、水の代わりに地球温暖化の原因とされる CO₂ を注入することで、石油回収と地球温暖化問題の解決を同時に達成しようとする方法において、油層(多孔質媒質)内で石油(高粘性流体)を注入流体(水やガスなどの低粘性流体)で置換する際に二流体の界面が一様に広がらず指状に広がる Viscous fingering (VF) (図 1)を形成する。VF の流体力学は 1950 年代^[1]から研究されている。VF の特性は、二流体が非混和な場合と完全混和の場合に大別される、ということがこれまでの通説となっている^[2]。しかし、石油回収や CO₂ 地中貯留のような高圧条件におけるプロセスでは、二流体が部分混和となる。部分混和とは、二流体が初期では拡散により溶解するが、時間が経つにつれて二相に分かれ始める系をいい、有限の相互溶解性を持つ系と考えられる。部分混和系での流体置換のダイナミクスの全容理解が近年指摘し始められた。ところが、部分混和系を用いた実験的検討は申請者らの研究以前では全く行われておらず、いくつかのシミュレーション研究^[3-5]で報告されるにとどまっていた。これは、これまでの VF 研究は主として流体力学の研究者によって行われており、常温常圧で部分混和となる系が知られていなかったことが主たる原因であると考えられる。

このような背景のもと、2 相流体置換の実験研究を専門とする東京農工大学・長津雄一郎教授、相分離をはじめとする化学熱力学を専門とする大阪大学・伴貴彦講師、流体置換の数値シミュレーションを専門とするインド工科大学・Manoranjan Mishra 教授との共同研究により、水性二相系を用いることなく非混和、完全混和、部分混和と変化させることができることを見出した^[6]。そして、完全混和・非混和系では観察されたことのない、部分混和系にのみ現れる特有の現象をいくつか見出している(図 1)。部分混和系 VF では完全混和・非混和系とも異なり、液滴が生成し、その液滴が自己駆動挙動を示すことを確認した(図 1c)。この自己駆動挙動は相分離の際に発生する自発対流である Korteweg 効果が発現することに起因する現象であることを明らかにした^[1]。本研究は 2020 年度 日本流体力学会 論文賞を受賞した。さらに、部分混和系における相分離と Korteweg 効果を加味した VF の数値シミュレーションを行い、実験での結果を再現・支持する結果を得た^[7](図 2)。そこで、本研究では課題を部分混和系での流体置換のダイナミクスの全容理解のための、個々のパラメータ(粘度、流量、自由エネルギーの形、Korteweg 効果の強さなど)が流体置換に与える影響や回収効率の関係を明らかにすることと設定した。また、各パラメータをコントロールして 3 次元石油回収実験を行い、Hele-Shaw セル実験や数値計算との乖離などを明らかにする。

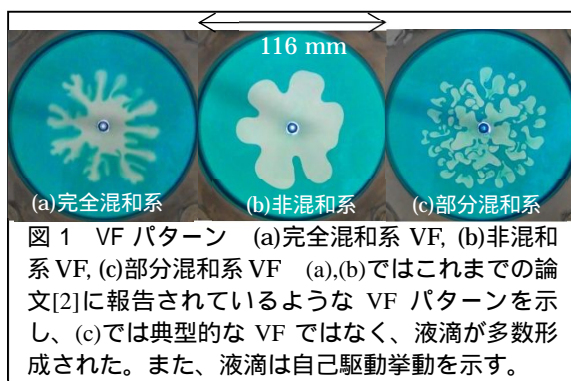


図 1 VF パターン (a)完全混和系 VF, (b)非混和系 VF, (c)部分混和系 VF (a),(b)ではこれまでの論文^[2]に報告されているような VF パターンを示し、(c)では典型的な VF ではなく、液滴が多数形成された。また、液滴は自己駆動挙動を示す。

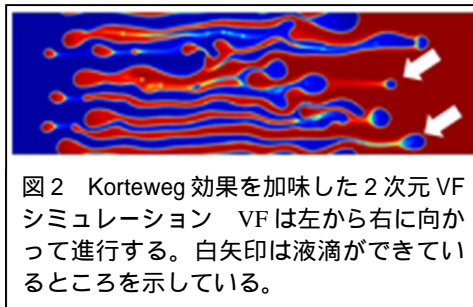


図 2 Korteweg 効果を加味した 2 次元 VF シミュレーション VF は左から右に向かって進行する。白矢印は液滴ができているところを示している。

- [1] P. G. Saffman, and G. Taylor, Proc. R. Soc. A, 245, 312 (1958)
- [2] G. M. Homsy, Annu. Rev. Fluid Mech., 19, 271 (1987)
- [3] X. Fu et al., Phys. Rev. E, 94, 33111 (2016)
- [4] M. A. Amooie et al., Geophys. Res. Lett., 44, 3624 (2017)
- [5] X. Fu et al., Phys. Rev. Fluid, 2, 104001 (2017)
- [6] R. X. Suzuki et al., J. Fluid Mech., 898, A11 (2020)
- [7] S. Seya et al., J. Fluid Mech., 938, A18 (2022)

2. 研究の目的

本研究の目的は前述の通り、部分混和系での流体置換のダイナミクスの全容理解と個々のパラメータ(粘度、流量、自由エネルギーの形、Korteweg 効果の強さなど)の影響を明らかにすることである。前述であるが、部分混和系での流体置換実験は申請者らの研究以外なく、また報告されているシミュレーションでの研究^[3-5]では Korteweg 効果を加味したものではないため現実に即していない。そのため、部分混和系で相分離と Korteweg 効果を加味した数値シミュレーションを基軸として実験で補完する本研究は独創性を持ち、新規的かつ重要性の高い研究であるといえる。

3. 研究の方法

目的の達成のために、本研究では次の4段階で行う。

1. **各パラメータの影響を考察するために、既存の2成分部分混和系でのVFシミュレーションでパラメトリックスタディを行う**
2. **申請者が現在までに行っている実験結果と比較するため、また図3に示すような様々なパターンのメカニズム解明を行うため、(1)で作成した部分混和系でのVFシミュレーションを3成分系に拡張する**
3. **シミュレーション結果で得られた最適なパラメータを再現できる実験溶液を作製し、擬2次元多孔質媒体(Hele-Shawセル)での流体置換実験を行う**
4. **実際の石油回収に即した実験を模した3次元多孔質媒質での流体置換実験を行う**



図3 (a)(b)臨界領域(完全混和系と部分混和系の境界領域)で観察されたVFパターン、(c)部分混和系で得られた安定なパターン(メカニズムは現在明らかになっていない)

4. 研究成果

実験：多孔質媒質を模倣した実験系を作成し、部分混和系流動実験を行った。この目的は、実際の多孔質媒質でも同じように議論できるのかを調査することである。というのも多孔質媒質での流れでは流路幅などの影響(キャピラリー圧やラプラス圧(液滴)など)があるのではないという疑問があったためである。図4に多孔質媒質を模したHele-Shaw cellである、多孔質Hele-Shawセルの模式図を示している。通常のHele-Shawセルは並行平板で微小空間を作製するが、多孔質Hele-Shawセルでは図4のように円柱状の突起物を配置することで流路を形成した。溶液系はこれまでと同じである。図5に示すように、完全混和系・非混和系ではVFを形成したのに対して、界面相分離を伴う部分混和系ではおおそVFになり、細かく見ると20wt% Na₂SO₄系(すなわち、相分離の度合いが最も大きい系)ではほとんどを置換できているように見える。これは、相分離の度合いが大きくなればなるほど、置換効率が良くなっていることを示す。例えば、石油回収でいえば、石油回収効率が良いことを示している。置換効率の向上に関する考察として以下を考えている。平行から離れた系での低粘性流体(液滴)は互いに反発しあう遮蔽効果(ポテンシャルのバリア)を持ち、相分離の度合いが大きくなるほどその遮蔽効果が大きくなる。相分離の大きさが大きいほど低粘性流体はより遮蔽しあうことで、より多くの流路を流れるようになるというものである。今後、より詳細な実験とモデル化による理論の説明、最終的にはシミュレーションでの実験の再現などを目指していく。

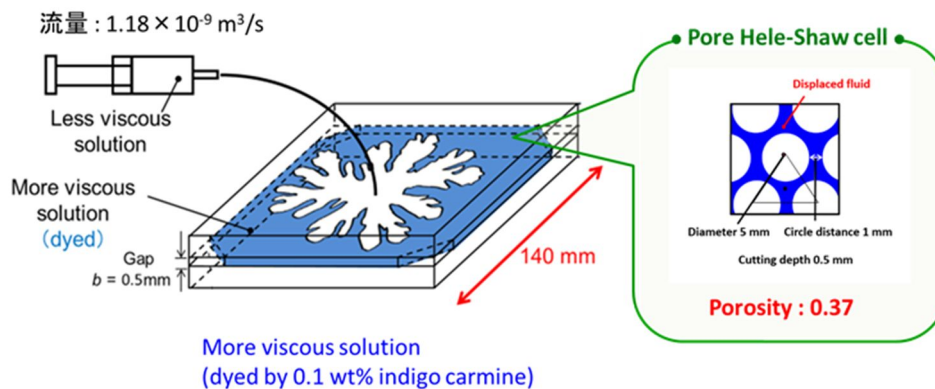


図4 多孔質 Hele-Shaw cell の模式図

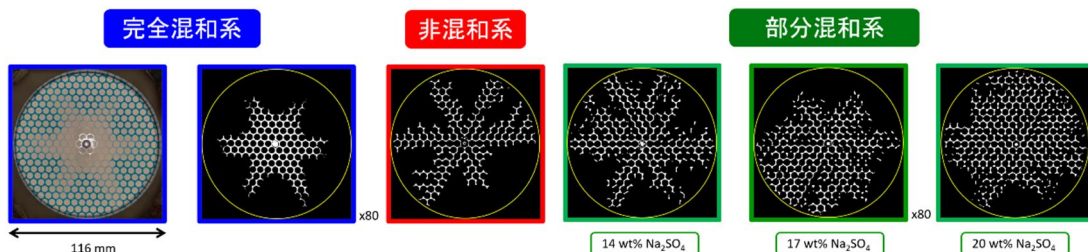


図5 多孔質 Hele-Shaw cell を用いた VF 実験

シミュレーション：実験と比較するため radial に成長する2成分系部分混和系の基礎をシミュ

レーションした。

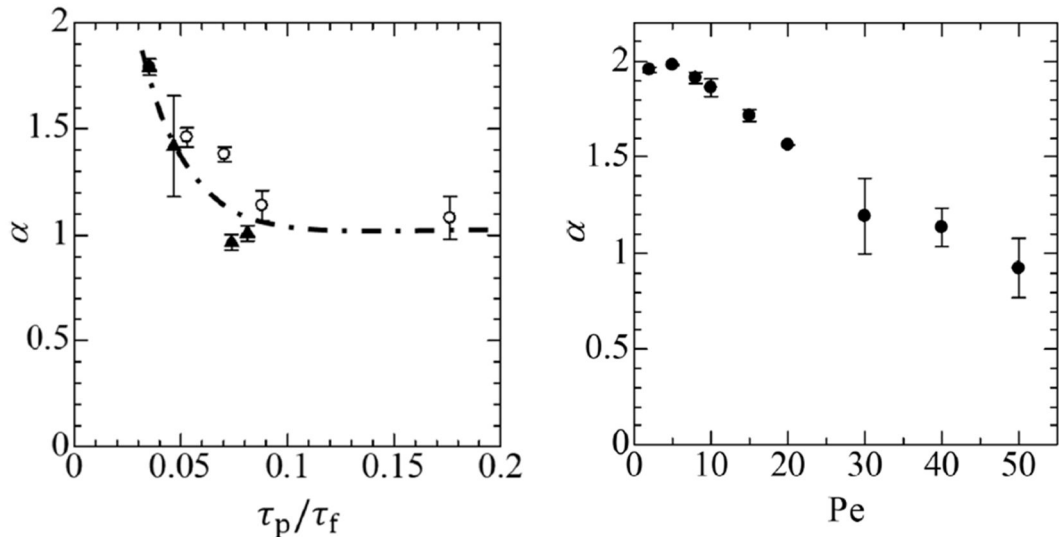
台湾・Ching-Yao Chen 教授と共同研究として、radial での広がりをも可能とする部分混和系 VF のコードを完成させ、パラメトリックスタディを行った。本研究では、xy のカーテシアン座標系で円形に広がりにコードを作成している。また、相分離の大きさを、自由エネルギーの関数形の α の値で変更できるようにしている。その結果、相分離の大きさによってパターンが異なることを示した。また、相分離の状態(不安定状態のスピンodal分解型や準安定状態の核形成成長型)によってパターンが異なることを発見した。これは実験を再現・説明できるものであり、これまでの rectilinear での広がりでは観察・再現することができなかったものである。

実験とシミュレーション：実験とシミュレーションで流量の大きさが界面相分離に与える影響について議論した。

流量と界面相分離の速度の影響が界面相分離の度合いに与える影響を実験およびシミュレーションにて調べた。実験における流量は実際の注入流量を変化させ、相分離の速度は硫酸ナトリウム濃度を変化させることでコントロールした。実験での相分離速度は、界面張力の時間変化から算出し、これを使用した。界面相分離の度合いは、相分離による界面積の時間変化から次式で定義できることから、 α の値を相分離の度合いと定義した。

$$\Delta A \propto t^\alpha \tag{1}$$

その結果、図 6(a)に示すように、流れの滞留時間に対する相分離の反応滞留時間の比である無次元数 τ_p/τ_f と α が 1 つの線で表せることがわかった。そのため、界面相分離の度合いは相分離の速度と流量のバランスから決まり、どちらか α に影響を与える、換言すればコントロール可能であることを示している。実験同様に、シミュレーションでも同様の結果を得た(図 6(b))。



(a) 実験における α と無次元比の関係

(b) シミュレーションにおける α と Pe の関係

図 6 (a) 実験と (b) シミュレーションにおける相分離の度合い α と無次元数(流速と相分離速度の比)の関係

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ban Takahiko, Ishii Hibiki, Onizuka Atsushi, Chatterjee Atanu, Suzuki Ryuta X., Nagatsu Yuichiro, Mishra Manoranjan	4. 巻 26
2. 論文標題 Momentum transport of morphological instability in fluid displacement with changes in viscosity	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 5633 ~ 5639
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CP03402J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Suzuki Ryuta X., Seya Shoji, Ban Takahiko, Mishra Manoranjan, Nagatsu Yuichiro	4. 巻 9
2. 論文標題 Arresting of interfacial phase separation with an imposed flow	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review Fluids	6. 最初と最後の頁 24003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevFluids.9.024003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Deki Yuka F., Nagatsu Yuichiro, Mishra Manoranjan, Suzuki Ryuta X.	4. 巻 965
2. 論文標題 Numerical study of the effect of Peclet number on miscible viscous fingering with effective interfacial tension	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Fluid Mechanics	6. 最初と最後の頁 A22
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1017/jfm.2023.405	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Iwasaki Kaori, Nagatsu Yuichiro, Ban Takahiko, Iijima Jun, Mishra Manoranjan, Suzuki Ryuta X.	4. 巻 25
2. 論文標題 Experimental demonstration of the suppression of viscous fingering in a partially miscible system	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 13399 ~ 13409
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CP00415E	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 10件）

1. 発表者名 岩崎かおり, 鈴木龍汰, 長津雄一郎, 伴貴彦, ミシュラマノランジャン, 長津雄一郎
2. 発表標題 部分混和系を用いたViscous fingeringの安定化
3. 学会等名 第73回コロナイドおよび界面化学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kaori Iwasaki, Ryuta X. Suzuki, Takahiko Ban, Manoranjan Mishra, Yuichiro Nagatsu
2. 発表標題 Stabilization of Viscous fingering in a Partially miscible system
3. 学会等名 Nineteenth International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuka Deki, Yuichiro Nagatsu, Manoranjan Mishra, Ryuta X. Suzuki
2. 発表標題 Effect of Pe on miscible viscous fingering with an effective interfacial tension
3. 学会等名 Nineteenth International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryuta X. Suzuki, Takahiko Ban, Shoji Seya, Manoranjan Mishra, Yuichiro Nagatsu
2. 発表標題 Arresting Effect on Interfacial Phase Separation by an Imposed Flow
3. 学会等名 Nineteenth International Conference on Flow Dynamics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shunichi Ono, Yuichiro Nagatsu, Ryuta X. Suzuki
2. 発表標題 Inside of miscible viscous fingering
3. 学会等名 American Physical Society, 75th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryuta X. Suzuki, Shoji Seya, Yuichiro Nagatsu, Takahiko Ban, Manoranjan Mishra
2. 発表標題 Numerical study on viscous fingering with a phase separation and the Korteweg force in a partially miscible system
3. 学会等名 American Physical Society, 75th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuka Deki, Yuichiro Nagatsu, Manoranjan Mishra, Ryuta X. Suzuki
2. 発表標題 Effect of Pe on miscible viscous fingering with an effective interfacial tension
3. 学会等名 American Physical Society, 75th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木龍汰, 瀬谷昇治, 長津雄一郎, 伴貴彦, Manoranjan Mishra
2. 発表標題 Korteweg力を伴う相分離に誘起されるViscous fingeringのトポロジカル変化に関する数値解析
3. 学会等名 化学工学会第88回年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 木内俊汰, Patmonoaji Anindityo, 長津雄一郎, 伴貴彦, Mishra Manorajan, 鈴木龍汰
2. 発表標題 マイクロセルを用いた部分混和系Viscous fingering
3. 学会等名 化学工学会 第89年会 (招待講演)
4. 発表年 2023年 ~ 2024年

1. 発表者名 伴 貴彦, 石井 響, 鈴木 龍汰, 長津 雄一郎, 後藤田 浩
2. 発表標題 疑二次元乱流を特徴づける順列エントロピーと熱力学エントロピーの関係
3. 学会等名 化学工学会 第89年会
4. 発表年 2023年 ~ 2024年

1. 発表者名 鈴木龍汰
2. 発表標題 流体力学と相分離が織り成す界面不安定現象
3. 学会等名 相変化界面研究会 第26.0回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Ryuta X. Suzuki
2. 発表標題 Experimental and numerical study on viscous fingering in a partially miscible system
3. 学会等名 The 9th Asian Symposium on Computational Heat Transfer and Fluid Flow (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuka Deki, Chi-Chian Chou, Ching-Yao Chen, Yuichiro Nagatsu, Takahiko Ban, Manoranjan Mishra, Ryuta X Suzuki
2. 発表標題 Numerical simulation of radial viscous fingering in a partially miscible system
3. 学会等名 American Physical Society, 76th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Ryuta X. Suzuki, Kaori Iwasaki, Takahiko Ban, Jun Iijima, Manoranjan Mishra, Yuichiro Nagatsu
2. 発表標題 Experimental demonstration on suppression of viscous fingering in a partially miscible system
3. 学会等名 American Physical Society, 76th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shunta Kiuchi, Anindityo Patmonoaji, Yuichiro Nagatsu, Takahiko Ban, Manoranjan Mishra, Ryuta X Suzuki
2. 発表標題 Viscous fingering in a partially miscible system in a 2-D micromodel
3. 学会等名 American Physical Society, 76th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 伴 貴彦, 鬼塚 淳, 鈴木 龍汰, Manoranjan Mishra, 長津 雄一郎
2. 発表標題 Saffman-Taylor不安定性の様態変化における選択律としてのエントロピー生成
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鈴木 龍汰, 出来 優花, 長津 雄一郎, ミシュラ マノランジャン
2. 発表標題 有効界面張力を伴う混和系VFにおけるペクレ数の影響に関する数値シミュレーション
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 木内 俊汰, Mishra Manoranjan, 長津 雄一郎, 伴 貴彦, Patmonoaji Anindityo, 鈴木 龍汰
2. 発表標題 マイクロセルを用いた部分混和系Viscous fingering
3. 学会等名 化学工学会第54回秋季大会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<受賞> 1) 動画賞, 化学工学会 粒子・流体プロセス部会, 2024年 2) 若手優秀講演表彰, 日本流体力学会, 2023年

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
インド	インド工科大学			