

地下エネルギー資源の増産手法の開発

研究代表者 栗原 正典
(創造理工学部 環境資源工学科 教授)

1. 研究課題

原油の三次回収法あるいは石油増進回収法 (EOR: Enhanced Oil Recovery) の1つとして、近年、低塩分濃度水攻法 (LSWF: Low Salinity Water Flooding) が注目されている。この手法は、低塩分濃度 (1000~5000 ppm) の水 (LSW: Low Salinity Water) を油層に圧入して油を回収するものであるが、圧入水の濃度が通常の水攻法で使用するものよりも低いこと以外は、通常の水攻法と同じである。従って、他の EOR よりも操業コストは安く、また、化学薬品等を使用しないため、環境への負荷も少ないという利点があり、現在多様な研究が進められている。しかしながら、この手法については様々な増油メカニズムが提唱されているにもかかわらず、現時点では決定的なメカニズムの解明には至っていない。また、砂岩と炭酸塩岩の油層では、LSWF による原油の回収メカニズムは異なると考えられている。

同じく EOR の1つとして、シリカアルミナ等のナノ粒子の水溶液を油層に圧入すること (NF: Nano-particle Flooding) によって、通常の水攻法に比べて油の回収率が増加する可能性があることも報告され始めているが、この手法の増油メカニズムも未解明である。

本研究では、LSWF および NF のメカニズムの解明を目的とし、コアを用いた LSWF 掃攻実験および排出水の分析、ナノ粒子溶液の基本特性の測定、マイクロチップによる LSWF および NF 挙動の観察、LSWF の挙動予測数値シミュレータの開発・改良、を実施した。また、EOR の挙動予測に広く適用される3相混在下における相対浸透率を、非定常状態の実験結果から数値計算によって推定するプログラムも作成した。

2. 主な研究成果

2.1 低塩分濃度水による EOR に関する研究

(1) コア掃攻実験

昨年度までに実施した砂岩コアによる実験に替えて、炭酸塩岩コア用いて LSW による掃攻実験を実施した。この実験では、原油を満たしたコア試料を通常の水で掃攻した後、LSW で掃攻し、さらに炭酸塩岩油層における LSWF において重要な役割を果たすと考えられている SO_4^{2-} イオンを多量に含む低塩分濃度水 (ALSW) によって原油の掃攻を試みた。その結果、図1に示すように、通常の水攻に比べ、LSW あるいは ALSW の圧入による増油は確認できなかったが、排出水中の各イオンの濃度から、炭酸塩岩における LSWF のメカニズムとして MIE-C (Multi-component Ionic Exchange-Carbonate) が有力であるとの示唆を得た。

(2) マイクロチップ実験

LSWF における諸現象を可視化して解析するために、孔隙形状を模したハッチングを施したガラス板によるマイクロチップを作製し、微視的な現象を把握することを試みた。その結果、LSWF によ

って、孔隙媒体の濡れ特性がより強い water wet に変化して油 - 水の相対浸透率が変化すること、水・油のマイクロエマルジョンが形成され、それが孔隙通路の一部を閉塞し、掃攻率を向上させる可能性があることが確認された。

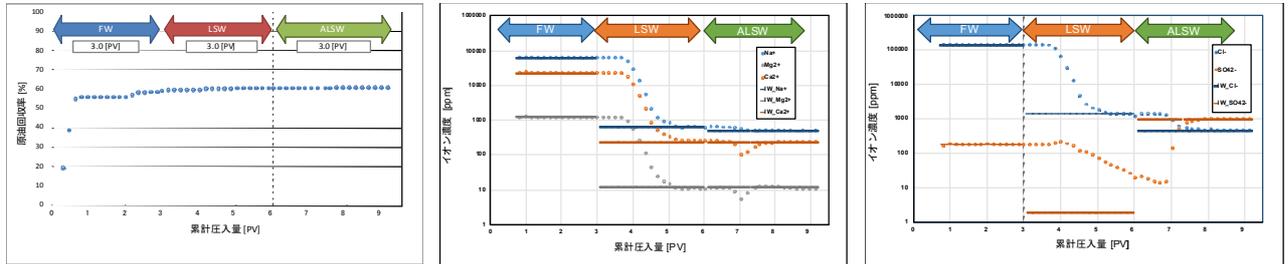


図1 炭酸塩岩コアを用いた LSWF 掃攻実験結果
(左：油回収率；中：排水中の陽イオン濃度；右：排水中の陰イオン濃度)

(3) 数値シミュレータの開発

LSWF のコア掃攻実験結果を定量的に解析し、さらにはフィールドスケールの LSWF 挙動を予測するために、昨年度までに、砂岩油層を対象とした LSWF の挙動を予測する数値シミュレータを構築・改良してきた。本年度はこのシミュレータの改良に加え、新たに炭酸塩岩油層を対象とした LSWF の挙動を予測するため、以下の機能を有する数値シミュレータの構築を試みた。

- 3 相 (油、水、固)、18 成分 (非極性油、極性油、 H_2O 、 $NaCl$ 、 $CaCl_2$ 、 $MaCl_2$ 、 $CaCO_3$ 、 $MgSO_4$ 、 H_2CO_3 、 H^+ 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 OH^- 、 Cl^- 、 HCO_3^- 、 CO_3^{2-} 、 SO_4^{2-}) の移流・拡散
- 速度論に基づく電離反応
- 速度論に基づく陰イオン・極性油の吸脱着
- 速度論に基づく鉱物反応
- 濡れ性の変化に伴う相対浸透率の変化
- 鉱物溶解に伴う極性油の脱着

本シミュレータは、以下のように導出した支配方程式を、電離反応、吸脱着、鉱物反応、相対浸透率変化等を記述した構成式と共に離散化して、数値的に解くものである。

油相中の流動成分

$$F_c = -\frac{\partial(\rho_o x_c u_o)}{\partial x} - \frac{\partial(\phi S_o \rho_o x_c)}{\partial t} + \hat{q}_o x'_c + D_c \frac{\partial^2(\rho_o x_c \phi S_o)}{\partial x^2} + \sum_{j=1}^{N_{reaction}} \alpha_j r_j^{reaction} + r_c^{mineral reaction} + r_c^{adsorption} = 0$$

水相中の流動成分

$$F_c = -\frac{\partial(\rho_w w_c u_w)}{\partial x} - \frac{\partial(\phi S_w \rho_w w_c)}{\partial t} + \hat{q}_w w'_c + D_c \frac{\partial^2(\rho_w w_c \phi S_w)}{\partial x^2} + \sum_{j=1}^{N_{reaction}} \alpha_j r_j^{reaction} + r_c^{mineral reaction} + r_c^{adsorption} = 0$$

岩石表面に吸着する油相中の成分

$$F_c = \frac{\partial(y_c)}{\partial t} - r_c^{adsorption} = 0$$

岩石表面に吸着する水相中の成分

$$F_c = \frac{\partial(z_c)}{\partial t} - r_c^{adsorption} = 0$$

固相中の鉱物成分

$$F_c = \frac{\partial(\phi^+ \rho_{calcite})}{\partial t} - r_c^{mineral\ reaction} = 0$$

上記で構築したシミュレータを、その計算結果を解析解等と比較することにより検証した後、図2に示すような感度分析スタディを実施した。その結果、炭酸塩岩油層における LSWF のメカニズムとして、MIE-C および鉱物（カルサイト）の溶解が有望であると示唆された。

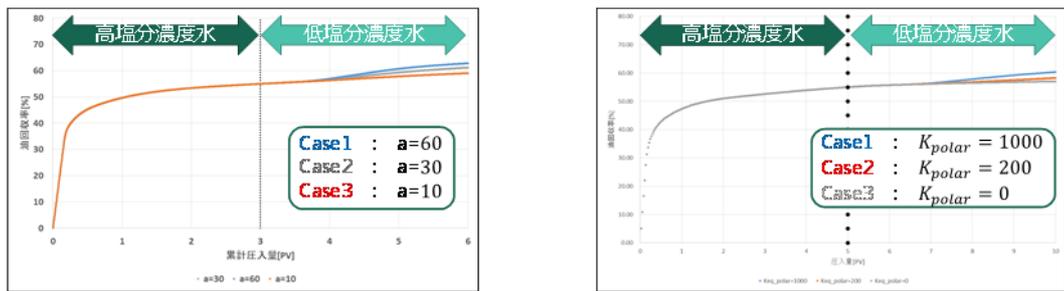


図2 炭酸塩岩油層における LSWF 挙動予測シミュレータを用いた感度分析スタディ結果例
(左：硫酸イオンの吸着定数の影響；右：溶解鉱物に付着している極性油量の影響)

2.2 ナノ粒子溶液による EOR に関する研究

2 種類のコロイダルシリカを、それぞれ濃度 0.01 wt%~1.0 wt% で合成地層水に分散させて 10 種類の溶液を作製し、これらの溶液と原油との界面張力をライジングドロップ法で測定した。また、同じくライジングドロップ法により、これらの溶液 - 原油 - 砂岩プレート・ガラスプレートの系における溶液とプレート間の接触角も測定した。その結果、図3に示すように、これらの溶液と原油の界面張力は合成地層水と原油の界面張力と大差ないこと、これらの溶液によって接触角が著しく減少し、対象プレートの濡れ特性がより強い water wet に変化することが確認された。

また、これらの溶液から 1 つを選び、上記と同じマイクロチップ内で原油を掃攻した。その結果、コロイダルシリカ溶液により孔隙表面の濡れ特性が変化し、合成地層水による掃攻に比べ、原油の孔隙表面への付着が抑制されることが確認された。

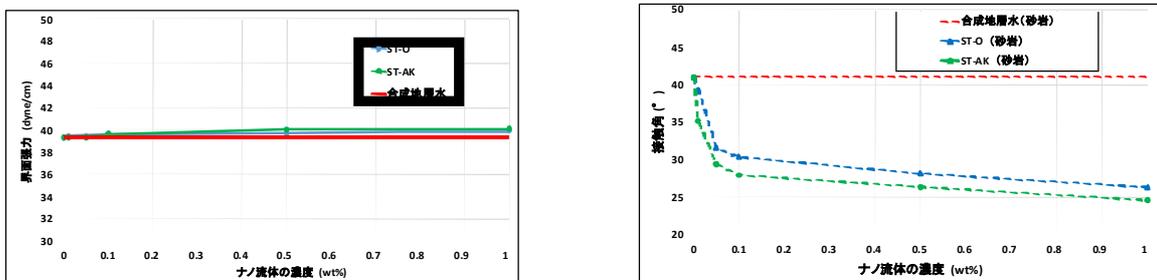


図2 コロイダルシリカ溶液の特性測定結果例
(左：原油との界面張力；右：砂岩プレートとの接触角)

2.3 3相混在下における相対浸透率を推定するプログラムの作成

昨年度までの研究で、比較的短時間に実施することが可能な非定常流動実験の結果と流動シミュレーションの結果をマッチングすることで、3相混在化での相対浸透率を正しく推定するプログラムを作成しているが、本年度は、非定常流動実験における流体飽和率パスを拡大することで、より精度よく相対浸透率を推定可能であることを示した。また、昨年度まで最適化手法として採用していた勾配法、繰り返しラテン超方格法および遺伝的アルゴリズムに加えて、AIを利用する手法を設計した。

3. 共同研究者

ウトモ・プラタマ・イスカンダル（創造理工学部 環境資源工学科 助手）

4. 研究業績

4.1 学術論文

Takahashi k., Utsunomiya H. and Kurihara M.: “Development of Optimization Program for Estimating Three-phase Relative Permeability from Unsteady-State Core Flooding Experiment by Genetic Algorithm and Iterative Latin Hypercube Sampling”, 24th Formation Evaluation Symposium of Japan, 2018

Wijayanto T., Kurihara M., Kurniawan T. and Muraza O.: “Experimental Investigation of Aluminosilicate Nanoparticle for Enhanced Recovery of Waxy Crude Oil”, Energy and Fuel (投稿中)

4.5 学会および社会的活動

石油技術協会理事

石油学会理事

日本地層評価学会（SPWLA Japan）会長

5. 研究活動の課題と展望

本研究により、炭酸塩岩油層における LSWF のメカニズムの解明を試みたが、コア掃攻実験の数が十分ではなく、解明には至っていない。今後は炭酸塩岩コアによる LSWF の実験を継続するとともに、炭酸塩岩における接触角や流体特性を含め、基礎物性の測定にも注力する。また、LSWF の挙動予測シミュレータに関しては、砂岩、炭酸塩岩を対象としたシミュレータをそれぞれ改良・拡張すると共に、両シミュレータを統合した、総合 LSWF 挙動予測シミュレータを完成させることを目指す。

一方、NF に関しては、コア掃攻実験はメカニズム解明のためには不可欠であり、早急の実施する予定である。また、この挙動を予測する数値シミュレータの開発に着手する。

さらに、3相混在下における相対浸透率を推定するプログラムについては、AIを導入して推定精度や計算効率の向上を試みる。