資 料
Note

産学連携研究

九州大学地球資源システム工学部門
資源開発工学研究室と JAPEX との共同研究

— 原油のガス溶解度およびガス拡散係数の測定と排油挙動解析 —

佐々木 久郎*・菅井 裕一*

(Received April 27, 2012 ; accepted May 11, 2012)

Joint Research between Mineral Resources Production Group, Kyushu University and JAPEX
— Measurements of Gas Solubility, Diffusion Coefficient and Production Behavior in Oil Reservoir —

Kyuro Sasaki and Yuichi Sugai

1. はじめに

九州大学大学院工学研究院地球資源システム工学部門資源開発工学研究室においては、石油資源開発株式会社（以下、JAPEX）との共同研究「油層におけるガス溶解度およびガス拡散係数の測定と排油挙動解析」を平成 20 年度から第 1 フェーズ、平成 23 年度から第 2 フェーズとして実施している。ここではその一端を紹介する。

大量の CO_2 を長期にわたって安定的に貯留可能な孔隙とキャップロックを有する石油貯留層は、CCS における CO_2 の貯留サイトとして期待されている。また、石油貯留層への CO_2 圧入による採油増進回収 (CO_2 -EOR) において圧入された CO_2 の約 6 割が貯留層内に貯留・固定されるという報告 (Pierre and Yann, 2009, Ren, 2009) もあり、これによれば CO_2 -EOR によって増産された石油は「カーボンニュートラル」な原油に近いとみなすこともできるため、石油貯留層への CCS は経済的にも有利と判断されている。また、 CO_2 の大規模排出源から分離・回収された純度の高い CO_2 だけではなく、 CO_2 を多量に含み天然ガスとしては利用が困難な随伴ガスを EOR に適用することも考えられており、これを想定した CO_2 と CH_4 の混合ガスによる採油増進効果についても調査・研究が進められている (Talbi and Maini, 2008)。

原油の回収においては、主に水蒸気を用いた熱攻法やポリマー攻法などが一般的によく用いられているが、今後

は CO_2 などを用いた EOR による開発がさらに活発になると予想され、前述した CCS の観点からも原油層における CO_2 などのガスを用いた EOR の進展が期待されている。

このような背景のもとに、本共同研究では、これらのガスを用いた原油の EOR を目的として、 CO_2 および CH_4 の水および原油への溶解度と、これらのガスの溶解に伴う原油の膨潤および表面張力などの基礎的な物性値を測定し、数値シミュレーションのための K 値などの基礎データの蓄積を図っている。

2. 九州大学がシステム改良を進めている
PVT 試験装置と原油へのガス溶解度の測定装置

九州大学および JAPEX において PVT 試験を実施している。九州大学が所有する PVT 試験装置 (図 1(a)) は Ruska 社製のモデル 2370 をもとにして、温度・圧力センサーおよび容積・圧力・温度の制御系に独自の改良が続けている装置である。ヒーターおよびチラーを具備することで、低温 (5℃) から高温 (200℃) までの幅広い温度範囲において試験を実施できるように改良されている。ヒーターおよびチラーの動作のいずれも、出力電流調整機能付きの温度コントローラーによって制御されており、温度揺らぎの少ない高精度な温度制御が可能である。最高加圧力は 10,000 psi であり、同圧力をフルスケールとする OMEGADYNE, INC. 製の高温圧力センサー (精度は $\pm 0.25\%$ FS) を用いて圧力を測定している。シリンダーは、その内径が 44 mm (最大容積は 360 ml) と比較的大きな容量を持つため、内部に 1.5 インチコアを導入することも

* 九州大学大学院工学研究院地球資源システム工学部門 Department of Earth Resources Engineering, Faculty of Engineering, Kyushu University

可能であり、本研究においては、原油などの液体試料だけでなく、ペレア砂岩コアをシリンダー内に導入して試験を行い、多孔質体内に存在する原油に対するガス溶解度や、砂岩に対するガスの吸着量についても検討している。シリンダーヘッド内にはサファイアガラス製の耐圧可視化窓が

設置されており、試験前後に同窓からシリンダー内の試料液面を確認することによって試料体積の確認が可能である。シリンダーの内容積は、ピストンの上下動を制御するステッピングモーターのパルス信号から算出されるが、その精度を保证するため、ピストン駆動部に設置したレー

(a) PVT 装置構成

(b) PVT 試験装置制御 / データ収録プログラム

図 1 九州大学がシステム改良を進めている PVT 試験装置

ザー変位計によってピストンの現在位置を把握し、パルス信号から求めたシリンダー内容積の妥当性を確認しながら試験を行っている。制御・データ収集プログラム(図1(b))によって、PVT条件の設定や、容積変化速度(1~50 ml/min)、攪拌速度、データサンプリングタイムなどを制御するとともに、PVTデータが自動で記録されるシステムを九州大学で独自に構築した。

ガス溶解度の測定においては、まずチャンバー内に設置されたバッファーセル内に試験ガスを導入し、この中で試験ガスを試験温度とした後、シリンダー内容積を最大としてバッファーセルからシリンダーに試験ガスを最終的に温度変化が生じないように導入し、この時のPVTデータからシリンダー内に導入した試験ガスのモル数を算出する。セル内に導入した試料や攪拌マグネットの体積を差し引いた自由ガス容積を変化させながら圧力を測定し、ガス相に存在する試験ガスのモル数を算出する。試験開始時のモル数から各圧力におけるガス相中の試験ガスのモル数を差し引くことにより、試料に溶解したガスのモル数が算出される。

上記の方法によって求められた水やヘキサデカンなどの純物質に対するCO₂の溶解度は、既往の文献値ともよい一致が認められており、本試験の妥当性が確認されている。実際に本研究において求められた原油に対するCO₂やCH₄の溶解度などの試験結果については別報(佐々木ら, 2011, Kono, *et al.*, 2011)に公表した。とくに原油に対するCO₂の溶解度はCH₄の場合の2倍以上であることや、原油に対するCO₂の飽和圧力はCH₄のそれに比べて1/2以下であるなど、原油に対するこれらのガスの溶解挙動を

定量的に明らかにし、数値シミュレーションのための基礎データを提示している。

3. 高圧可視化セルを用いたガスの溶解に伴う原油の膨潤率および表面張力の測定

各種ガスの原油への溶解度は前述したPVT試験により求められるが、ガスの溶解に伴い生じる原油の膨潤や表面張力の低下は、その採油増進を考慮する上で重要な特性であるため、本共同研究においてもその定量的把握を行っている。

試験に用いているステンレス製高圧可視化セル(図2)は内容積が750 mlであり、最高使用圧力は10 MPaである。図2に示したように、2つの高圧可視化窓が対面方向に配置されており、一方の窓から照明を供給し、一方の窓で観察する。セル壁内部に温水を循環させることによってセル内部を一定温度に保持することができる。同セルは容積一定であるため、液体CO₂ポンベの圧力(≒5 MPa)以上の圧力で試験を行う場合には、ガスプースター(MAXIMATOR社製)もしくは高圧シリンジポンプ(ISCO社製)を用いてCO₂を所定の圧力で注入する。

ガスの溶解による原油の膨潤率の測定は、ガラスセルに入れた原油を同可視化セル内に設置し、CO₂ならびにCH₄によって所定の圧力まで加圧して、一定時間おきに固定カメラによりセル内部を撮影して行う。撮影された全ての画像を解析し、試験初期の原油体積に対する膨潤率を算出する。

膨潤率の測定試験において観察される原油の膨潤の一例を図3に示す。一条件の測定において原油の膨潤量が飽和

図2 原油の膨潤 / 表面張力測定試験に用いる高圧可視化セル

図3 CO₂の溶解に伴う原油の膨潤挙動の一例 (50℃, 10 MPa) 図4 CO₂の溶解に伴う砂岩コアからのフォーミーオイルの排出

するまでには10日以上を要する。CO₂の溶解による重質油の膨潤率は中質油の場合の約55%であり、同じ原油であってもCH₄の溶解による膨潤率はCO₂の場合の1/5であることなどを明らかにしており、さまざまな条件における膨潤率を求め、ガス溶解度との関係を定量化している(詳細な試験結果については別報(佐々木ら, 2011, Kono, *et al.*, 2011)に示す)。また, Riazi (1996)と同様の手法により, 容器内の原油の一次元非定常拡散・溶解微分方程式の解と膨潤率との相似性モデルを構築することで, 原油中のガス分子拡散係数を算出している。

膨潤率の測定と同様にしてガスの溶解による原油の表面張力の変化についても測定を行っている。毛管力によって原油を導入したガラス細管を同可視化セル内に設置し, 各種ガスを圧入してガラス細管内の油面の低下を観測し, ガスの溶解に伴う原油の表面張力の低下を測定している。

4. 原油充填砂岩コアを用いたガス溶解試験

原油で飽和させたベレア砂岩コアを試料として, PVT試験装置および高圧可視化セルを用いたガスの溶解試験によって, 多孔質体内に存在する原油に対するガスの溶解挙動や, ガスの溶解に伴う原油の膨潤および表面張力低下などによる排油効果などを検討している。

図4に高圧可視化セルを用いたCO₂雰囲気下における原油充填コアからの排油状況の観察結果の一例を示す。CO₂による昇圧過程においては明確な排油は確認されなかったが, 減圧過程においてはコア内からの気泡とともに排出される油(フォーミーオイル(図中の白色の部分))が認められた。試験後にセルから取り出したコアからはフォーミーオイルとして排出され, ガス溶解後の減圧による排油促進の可能性が示されている。この排油挙動は, 原

油からのガスの溶出が比較的早期に終了するCH₄を用いた場合や, 中質油を用いた場合においては明確に観察されなかったため, フォーミーオイルの形成による排油促進効果は, CO₂が溶解した重質原油において溶解したCO₂がある種の条件下で溶出することで生成されることが示されている。

5. これまでの研究成果と今後の展開

本共同研究の成果として2011年3月にカナダ・エドモントンにおいて開催されたWorld Heavy Oil Congress 2011において“Oil Drainage by CO₂ Gas Diffusion, Dissolution and Foaming in Heavy Oil”のタイトルで論文発表を行った(論文番号: WHOC11-327)。また, 平成23年6月に東京で行われた平成23年度石油技術協会春季講演会開発・生産シンポジウムにおいて「CO₂関連技術への取り組み—その実績と展望—」のタイトルで講演し, その詳細を石油技術協会誌に発表した(第76巻第6号522~529頁(平成23年11月))。また, 本研究において実験の遂行に携わった大学院生は, 本研究を通じて石油開発業界に強い興味を持ち, 希望した会社で石油開発に取り組んでいる。

今後はさらに油層内の状況を考慮し, 水-油-ガスの3相系におけるガスの原油への溶解と膨潤挙動について検討する予定である。また, ガスについてもCO₂を含む随伴ガスなどを想定して, 混合ガスを用いた場合のそれぞれのガス成分の原油への溶解度についても検討を進める予定である。

引用文献

Kono, H., Sasaki, K., Sugai, Y., Takahashi, T., Ito, D. and Okabe, T., 2011: Oil Drainage by CO₂ Gas Diffusion, Dis-

- solution and Foaming in Heavy Oil, *Proceeding (WHOC11-327) Presented at World Heavy Oil Congress 2011, Edmonton, Canada*, Mar.15–17.
- Pierre, L. T. and Yann, L. G., 2009 : Use of CO₂ for Enhanced Oil Recovery and Storage, *Abstract presented at AAPG European Region Annual Conference, Paris-Malmaison, France*, Nov.23–24.
- Ren, S., 2009 : Assessment of Carbon Dioxide, Enhanced Oil Recovery and Storage Potential in Caoshe Oilfield, Subei Basin, China. *Final report of the Near Zero Emissions Coal (NZEC) Project*, Work Package 4.
- Riazi, M. R., 1996 : A New Method for Experimental Measurement of Diffusion Coefficients in Reservoir Fluids, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, **14** (3-4), 235–250.
- 佐々木久郎・菅井裕一・河野洋之・高橋孝志・伊藤大輔・岡部孝, 2011 : 重質油層の CO₂-EOR および貯留にかかわるガス溶解量, 石技誌, **76** (6), 522–529.
- Talbi, K. and Maini, B. B., 2008 : Experimental Investigation of CO₂-Based VAPEX for Recovery of Heavy Oils and Bitumen, *Journal of Canadian Petroleum Technology*, **47** (4), 29–36.