油層岩石の浸透率と孔げき率, 内部表面積の関係について*

山崎 豊彦**, 吉田 潔**, 石井 純一**

On the Relation between Permeability, Porosity and
Internal-surface-area of Reservoir Rock*

by Toyohiko Yamasaki**, Kiyoshi Yoshida** and Jun-ichi Ishii**

Summary : In this paper, the adaptability of Kozeny's equation was discussed on the relationship between permeability, porosity and internal surface area. The method of determination of surface area as employed in this work result in the measurement of physical adsorption of nitrogen, using gaschromatography, with the aid of the theory of isothermal adsorption by Brunauer, Emmett and Teller (BET).

In this experiment, the surface area of rocks showed fairly large values of about 27 to 51.1 square meters per cubic centimeter of pore volume.

Kozeny's constants were calculated with permeability and surface area of each rock. These constants were by far larger than 5, as determined theoretically. However, it was believed that the Kozeny's equation applies when it was corrected by roughness for surface.

It was also shown that the permeabilities might be related with the surface areas for unit pore volume.

1 緒 言

油層岩のガス透過性は油層岩石中の孔げきの大きさや長さ, そしてその形状が主な因子と考えられる。

もちろん岩石中のある種の物質は流体の種類に応じて界面の親和力が異なり, 流体の透過性に影響を及ぼす。その最も良い例は粘土鉱物と水の関係である。Engelhardt および Tunn¹⁾の研究では Darcy の法則で示された圧力こう配と流量の関係より, 圧力こう配の増加に伴って流量が増加することが認められた。

このような現象は純粋なまた自然の粘土についても観察されている。このような岩石内の流体の透過現象は Non-Darcy Flow と呼ばれている。しかし油層岩石中の気体の流れは低圧のもとでは, 一般に Darcy の法則に従うことが多い。固体表面における各種ガス体の親和力の差はガスクロマトグラフィーに應用されてはいるが, 自然界の岩石ではあまりガス体に対する親和度の差がなく, これよりむしろ前回の報告に示したように²⁾, その分子運動に基づくスリップ現象に注目すべきであろう。これら流体の物理化学的性質, 気体・固体の界面相互作用を除けば, 油層岩の流れの特性を左右するものは孔げきの物理的, 機械的性質である。したがってここでは岩石の内部構造を左右する因子, 孔げき率と内部表面積, 浸透率を測定し, その三者の相関性について検討した。

2 実験方法

2.1 試料岩石

油層は普通多孔質の岩石からなっていて, その種類も多いが, 本邦の含油層, 含ガス層は砂層, 細粒砂岩である場合が多い。したがってこの実験で用いた試料も, これに類似した岩石類を選んだ。この中の油層岩石の一つについて, X線回折法を用い, 構成鉱物を調べて見ると, その主なものは石英, 斜長石, Kaolinite, Illite, などであった。このうち石英, 斜長石は岩石の骨核をなす粒子で Kaolinite, Illite はその間げきを充てんする粘土鉱物によるものと考えられた。これら岩石の顕微鏡写真は Fig. 1 (a) に示すようで, 構成粒子は 0.3 mm 程度であるが, 粒子間を充てんした物質には無数の微細孔げきが認められる。

またかなり大きな孔げきも認められるが, この孔げきは連続性がないようである。Table 1 は油層岩石を構成する粒子の粒度分布の一例を示したものである。この結果でも 0.2 ないし 0.3 mm のものが 37% 程度にも及んでいる。しかし浸透性の低い岩石では, これらの粒子間げきはこう結物質で充てんされていることが Fig. 1 (b) によっても明らかに認められる。実験に用いた岩石は概して浸透性の低いものが多かったが, これは孔げき充てん率の高いものであった。

2.2 孔げき率の測定法

筆者らは岩石の孔げき率測定では水置換による岩石密度を利用してきたが, 本実験のように粘土鉱物を含む試料では粘土の水和作用で著しい容積変化を起こすので利用できない。したがって, ここでは水銀置換法, 空気置換法を併用した。

* 昭和 45 年 3 月 28 日受理

** 早稲田大学理工学部 (東京都新宿区 西大久保 4-170) School of Science and Engineering, Waseda University (4-170, Nishi-Okubo, Shinjuku-ku, Tokyo)

(a) Permeable Sand-stone

(b) Less Permeable Sand-stone

Fig. 1 Microscopic Photographs of Sand-stone

Table 1 Grain Size Distribution of Rock

Grain Size (mm)	Weight Percentage (%)
0.59 over	1.62
0.59 - 0.42	2.84
0.42 - 0.29	12.60
0.29 - 0.21	36.65
0.21 - 0.149	11.05
0.149 - 0.105	21.30
0.105 - 0.047	4.28
0.047 - 0.044	6.98
0.044 under	2.98

水銀置換法に用いた装置は Kobe-porosimeter と同形のもので, 最大水銀圧入圧 80 kg/cm², マイクロメーターの最小目盛は 1/10 mm であった。

空気置換法はガス吸着測定に利用したビューレット, 水銀マノメーター, 試料びんの組合せによるガス吸着装置を利用した。ビューレットの最小目盛は 0.1 cc であった。Kobe-porosimeter を利用すれば, 直接水銀圧入量から孔げき率を決定することができるが, 80 kg/cm² までの圧力で浸入する水銀量は岩石によって異なるが約 80% 程度にとどまるので, 完全な孔げき率とされない。

2.3 浸透率の測定法

岩石の浸透率測定は前回報告した³⁾ 高圧浸透率の測定法とほぼ大気圧下での浸透率測定を行なったが, 高圧の場合には Darcy の法則に従わないことがあるので, 大気圧下で透浸率の測定を行なった。これに用いた測定装置は島津製作所の粉体比表面積測定器を利用し, 試料ホルダー A に直径 1 cm のプラグコアを入れ, その周囲を油粘土で充てんした。試料の上部 (気体流入口) は大気圧に保たれ, 差圧は水流出口 J, I を移動させながら差圧を変化させ, ガスの透過量を H の目盛部で 20 cc 透過する時間をストップウォッチで読み取る。この方法では差圧が小さいので Darcy の法則はいつでも成立した。Fig. 2 は

Fig. 2 Low Pressure Permeameter

- A : Sample holder
- B : Porous metal plate
- E : Water inlet bowl
- F : Air inlet way
- D : Three way cock
- G : Air bubbling point
- H : Graduate tube
- I : Water over flow point
- J : Stop valve

Fig. 3 N₂ Adsorption and Desorption Curve by Gaschromatography

その装置を示す。

2.4 内部表面積の測定法

内部表面積の測定は柴田自記表面積計 SA-200 を用いた。この測定法は従来の BET 法の真空方式と異なり, 流出ガス He に分圧で 0.05~0.35 の範囲で窒素を混入し, 液体窒素の温度で

窒素を岩石表面に吸着させ, その時の組成変化を熱伝導セルによって検出し, 記録させる方法である。吸着した窒素ガス量は, 装置内に内蔵された窒素ガスと比較して決定し, BET の方程式を用いて比表面積を決定した。この装置の精度は真空法に比べ 2~3% 小さいとされている。筆者らの標準試料 (カーボンブラック) に対する検定でもこの程度であることを確かめた。

岩石表面での窒素ガス吸着と脱着は Fig. 3 に示すように, 脱着曲線で二つのピークを示し, かつその面積は吸着面積に比較して幾分小さい。これは岩石が種々の鉱物の混合物で, 窒素の吸着能が違っているためである。したがって, この実験では吸着曲線を用いて吸着量の計算を行なった。

3 実験結果

3.1 試料の孔げき率

試料の孔げき率はその岩石の水銀置換によるかさ容積と空気置換による粒子容積によって次式から計算した。

$$\phi = \frac{V_b - V_g}{V_b} \times 100 (\%)$$

その結果は Table 2 のようである。この表では参考までにかさ密度, 粒子密度を示しておく。なお試料は 100°C で乾燥させたものを用いた。試料は砂岩のほか人工炭化けい素多孔材 2 種を用いた。

Table 2 Density and Porosity of Porous Rocks

Sample No.	Bulk Volume (cc)	Grain Volume (cc)	Bulk Density (g/cc)	Grain Density (g/cc)	Porosity (%)
1	7.32	5.38	2.12	2.88	26.5
2	5.18	3.42	1.86	2.81	34.0
3	7.19	5.11	1.95	2.74	28.9
4	5.65	4.37	2.16	2.79	22.7
5	1.80	0.89	1.49	3.02	50.6
6	5.69	2.83	1.53	3.09	50.3
7	2.63	1.82	1.89	2.74	30.8
8	3.71	2.84	2.07	2.71	23.5
9	1.64	1.22	1.95	2.63	25.6
10	3.91	2.70	1.81	2.62	30.9
11	3.46	2.61	2.05	2.73	24.9
12	3.71	2.79	2.05	2.73	24.9
13	3.55	2.68	2.06	2.73	24.5
14	3.74	2.84	2.07	2.73	24.2
15	3.50	2.58	2.05	2.78	26.3
16	3.72	2.76	2.06	2.78	25.9
17	3.59	2.68	2.07	2.78	25.5
18	3.83	2.88	2.08	2.78	25.2
19	3.55	2.81	2.09	2.64	20.8
20	3.63	2.88	2.09	2.64	20.8
21	3.57	2.82	2.08	2.64	21.2
22	3.52	2.75	2.07	2.64	22.1

3.2 岩石内の孔けき半径について

岩石内の孔けき半径の分布については N.T. Burdine⁴⁾ の研究がある。彼らは圧力の変化に伴う水銀の浸入量を測定して、これから孔けき半径の分布関数および孔けき半径を求めている。本実験でも水銀置換ポロシメーターを利用し、80 kg/cm² までの圧力で水銀を圧入し、その置換量と圧力の関係を求め、孔けき半径を次式で計算した結果、

$$R = \frac{-2\sigma \cos \theta}{p}$$

$$2\sigma \cos \theta = 75000 \text{ [Å} \cdot \text{kg/cm}^2 \text{]}$$

No. 1 から No. 4 までの試料について Table 3 のような分布結果を得た。この結果から水銀置換率は 0.09 μ 以上の合計として求められる。

3.3 試料の低圧空気浸透率

前項で述べた方法により、低圧浸透率を測定した。この結果はすべて流量と差圧が比例し、Darcy の式により、浸透率 K を決定することができた。しかし選定した同種試料でも岩石中のきょう雑物のため、20% 程度の差が浸透率に現れることもあった。このような場合は肉眼的にきょう雑物の存在が認められたので、できるだけきょう雑物のない砂岩を選んだ。この測定結果は Table 4 に示す。

3.4 試料の内部表面積

内部表面積は窒素の吸着量より求めたが、岩石の構成成分の

Table 3 Pore Distribution of Rocks

Radius (μ)		Volume (%)							
Sample No.	under 0.09	0.11	0.13	0.15	0.19	0.25	0.38	0.75	over 0.75
1	66.3	1.1	1.1	1.2	1.2	1.6	2.2	4.7	20.6
2	33.6	1.6	1.6	1.6	1.7	1.8	2.8	5.6	49.7
3	20.1	1.5	1.5	1.5	1.7	2.0	3.5	9.0	59.2
4	47.6	1.5	1.6	1.7	2.3	3.1	6.4	17.6	18.2

Table 4 Permeability, Porosity and Internal Surface-area to Pore-volume

Sample No.	K (md)	(%)	S (m ² /cc)	Remarks
1	4.65	26.5	51.5	Sand stone
2	7.02	34.0	38.2	"
3	4.74	28.9	32.0	"
4	1.12	22.7	53.5	"
5	1,140.	51.	13	SiC ceramic
6	1,330.	50.4	9.2	"
7	67.6	32.	27	Sand stone
8	197.	24	38	"
9	3.22	26	47	"
10	1.02	31.2	49.1	"
11	1.20	24.9	39.7	Tuff. sand stone
12	1.92	24.9	33.0	"
13	2.16	24.5	37.0	"
14	2.56	24.2	42.8	"
15	2.03	26.3	29.0	"
16	1.92	25.9	33.6	"
17	2.68	25.5	30.1	"
18	—	25.2	22.0	"
19	1.68	20.8	57.4	"
20	1.21	20.8	46.4	"
21	1.42	21.2	54.6	"
22	3.00	22.1	45.4	"

差によって当然その表面積も異なってくる。岩石はその骨格をなす石英や長石粒子と、その粒間を充たす粘土鉱物質その他この結物質からなっている。この結物質中で粘土質のものは水に溶出してくるものもあるので、この物質の内部表面積も測定した。この結果水に溶出する成分の内部表面積はもとの岩石の約5倍であった。各試料の測定結果は Table 4 に示した。またこの表には孔けき率も表示した。

4 実験結果の考察

一般に多孔質内の流体の透過に関しては、Kozeny の理論式が用いられるとされている⁵⁾。しかし毛細孔けきを持った物質のガス透過については種々検討されている⁶⁾。この研究で用いた試料は砂岩が主なものであるが、構成成分や物理的な形状も異なるので、孔けき率、内部表面積、浸透率の間に一義的な関係を見いだすことは難しいと思われたが、いちおう岩石を毛細管の集束と仮定して、Kozeny 式を検討してみた。

4.1 岩石を毛細管の束と考えた場合の Kozeny 式

岩石の孔けきは平均半径 r の毛細管 n 本でできているものとする、Poiseuille の式および Darcy の式から

$$K = \frac{\phi}{2t^2 S_p^2} \times 10^8 \text{ [darcy]} \quad (1)$$

ここで t は毛細管実長と試料長の比で、 t^2 は tortuosity と呼ばれている。Kozeny 式では

$$K = \frac{\phi}{K_z S_p^2} \times 10^8 \text{ [darcy]} \quad (2)$$

として表わされ、Carman⁷⁾ によればたいていの場合 K_z は 5 であると報告されている。しかし式 (2) の S_p は粉体粒子の外部表面積から求められた値であって、本実験のように窒素ガス吸着で測定した内部表面積をそのまま採用することはできないが、検討のため Table 4 の結果から式 (1), (2) を用いて t および K_z を計算した。この結果は Fig. 4 に示す

Fig. 4 Kozeny Const. vs. Permeability

Table 5 Pore Radius (Mean Value)

Sample No.	r (μ)
1	0.0388
2	0.0524
3	0.0625
4	0.0374
5	0.15
6	0.218
7	0.074
8	0.053
9	0.043
10	0.0407

ようである。この結果では Kozeny 係数が著しく小さく、定数ではないが、浸透率と K_z の間の相関性は認められる。

4.2 平均孔げき半径

毛細管の集合と考えた場合は一般に式 (3) で計算されている。

$$\bar{r} = \frac{2}{S_p} \quad (3)$$

式 (3) を用いて Table 4 の結果から、平均孔げき半径を求めて見ると Table 5 のようである。

この結果では人工岩石 No. 5, No. 6 以外は孔げき半径がかなり小さい。この結果はいちおう水銀圧入法によって求めた結果と対応される。たとえば試料 No. 1 では半径 0.09μ 以下がまだ 66.3% と存在すること、また No. 1, No. 4 に比較して No. 2, No. 3 が大きいことなどであるが、いずれも定性的な考察の範囲に止まった。またこの結果はガス浸透率や固結度とも良い対応を示した (脚注 1)。

5 結 論

多孔体の孔げき率, 表面積, 浸透率の相関性については式 (1) の Kozeny 式が成立することが認められてきたが, 岩石のような各種鉱物の集合体については多孔質の内部表面積や孔げき率の内容がきわめて複雑になってくる。したがって, Kozeny 式がこれらの相関を決定するすべてではない。Kozeny 係数の補正については各分野でそれぞれ検討されてきた。筆者らの実験では Kozeny 係数は従来, 球体の集合と考えうような多孔体の場合とは著しく相異し, かつ低浸透率の岩石では一定と見なすことはできない。Fig. 4 は浸透率と Kozeny 係数の関係を両対数グラフにプロットしたものである。この結果は内部表面積がそのまま岩石の浸透率を左右する独立因子であると考

脚注 1) 固結度は水中自然崩壊性, ぜい性などによる。

Fig. 5 The Relation between Permeability and Internal-surface-area for Porevolume

えられ, 特に浸透性の低い岩石についてはいわゆる Kozeny 係数に, 計算された Kozeny 係数値が近づく傾向が認められた。Corman の実験で用いられた試料では, 計算された外部表面積を表面積として採用しているの, この実験で測定した内部表面積はこのままでは Kozeny の式に適用しえない。また岩石内部の平均孔げき半径を計算する場合でも式 (3) をそのまま利用しえない。これらについては現在検討中であるが, 孔げき円管内の粗度という表示法で解決できるだろう。

今回の実験結果から, 特に Kozeny 式にこだわらなければ低浸透率の岩石でも, 浸透率と孔げき単位容積当り表面積の間には Fig. 5 に示すような関係があることが認められた。しかしこの結果は試料の浸透率に変化が少ないので, 今少し実験を重ねてみる必要があるものと思われる。

本実験を遂行するに当たり, 貴重なコア試料の提供を受けた石油資源開発株式会社, 帝国石油株式会社の各位に深謝の意を表す。

記 号

K : 浸透率	md
K_z : Kozeny 係数	
p : 水銀圧入圧	kg/cm ²
R : 孔げき半径	$\text{\AA}$
$\bar{r}$: 平均孔げき半径	cm
t : 実孔げき経路長と試料長の比	
S_p : 単位孔げき容積当りの内部表面積	cm/cc
σ : 表面張力	kg/cm ²
θ : 接触角	radian
ϕ : 孔げき率	%
V_b : かさ容積	cc
V_g : 粒子容積	cc

文 献

- Engelhardt, W., Tunn, W., ASTM, STP (417) 108 (1967).
- 山崎豊彦, 安里 潤, 石油誌, 12, (7), 539 (1969).
- 山崎豊彦, 安里 潤, 石油誌, 12, (7), 541 (1969).
- Burdine, N.T., Gournay, L.S., Reichertz, P.P., *Petrol. Trans. A.I.M.E.*, 189, 195 (1950).
- Amyx, J.W., Bass, D.M., Whiting, R.L., "Petroleum Reservoir Engineering", 98 (1960) McGraw-Hill, New York.
- 神保元三, 岩本文男, 森 芳郎, 粉体工学シンポジウム前刷(1966).
- Carman, P.C., *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 15, 150 (1937).