

令和 6 年 6 月 14 日現在

機関番号：11401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04959

研究課題名（和文）シリカナノ粒子を用いた石油増進回収技術の増油機構解明と流体挙動の可視化

研究課題名（英文）Clarification of the mechanisms for enhanced oil recovery using the silica nanoparticle and visualization of the fluid behavior

研究代表者

阿部 一徳（Abe, Kazunori）

秋田大学・国際資源学研究科・助教

研究者番号：50746782

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000 円

研究成果の概要（和文）：シリカナノ粒子含有塩水を石油貯留層に圧入して油回収率を増加させる手法において、増油機構の実態解明を目的とし、岩石コアを用いた掃攻試験や濡れ性改質評価、マイクロ流路モデルを用いた多孔質媒体中での流体挙動の可視化実験等を実施した。シリカナノ粒子による増油機構としては孔隙表面の濡れ性が強い水濡れ性にシフトしたことが主要因であり、ナノ粒子が油-水-岩石間に侵入したことによる岩石表面への吸着層形成および分離圧の上昇による油剥離の影響によるものであることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

シリカナノ粒子を用いた石油増進回収技術は環境調和性に優れ、費用対効果の高い手法の一つである。岩石中でのシリカナノ粒子および油・水挙動を明らかにすることは、数値シミュレーションモデルの構築、延いてはフィールドスケールでの油生産の効率化に繋がる。またマイクロ流路モデルを用いた流体挙動の直接観察システムの構築を図ることで、地下条件を想定した不均質な多孔質媒体中での混相流挙動の評価技術向上となることも期待される。石油生産技術は、地下深部に存在する流体資源（水・油・ガス）開発における共通基盤技術であるため、温室効果ガス削減を目的としたCO₂地下貯留の効率化に向けても重要となる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to clarify the mechanism of oil recovery technique using silica nanoparticle-containing brine through a special core analysis (core flooding tests, wettability evaluations) and visualization of fluid behavior using a microfluidic model. The main mechanism of oil recovery by silica nanoparticles was confirmed to be the modification of the wettability of the pore surface, which shifted to strong water wet condition. It was also suggested that the nanoparticles injected into the oil-water-rock interface, forming an adsorption layer on the rock surface, and the oil peeling effect due to the increase in disjoining pressure.

研究分野：資源開発工学

キーワード：石油増進回収法 鉱物ナノ粒子 濡れ性 資源開発 流体挙動 マイクロ流路モデル

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

シリカナノ粒子を用いた石油増進回収技術は、環境調和性が高く、一定の増油効果も報告されているが、油層条件下での流体挙動には不明瞭な点も多い。それゆえ実油層条件を想定し、ナノ粒子の安定性評価、コア掃攻試験による増油効果および圧力挙動測定、岩石表面の濡れ性および油水間の界面張力測定を行うことで、シリカナノ粒子を用いた石油増進回収技術の増油機構および油層適用条件を明らかにする必要がある。また、不均質な多孔質媒体中の混相流は一般的に複雑な挙動を示し評価が困難となり易いため、マイクロ流路モデルを用いた流体挙動の直接観察システムの構築を図るとともに、本研究ではシリカナノ粒子による増油機構の実態解明に向けて、ナノ粒子および油・水挙動の理解を深める必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、シリカナノ粒子を用いた石油増進回収法における増油機構の解明に向けて、特殊コア試験から増油効果や圧力挙動を評価し、岩石表面の濡れ性や油水間の界面張力との相関性を考察することで、各要素の増油効果へのインパクトを明らかにする。併せて、油層を想定した条件下でシリカナノ粒子の凝集性や岩石中での輸送性を評価することで、油層への安定的な圧入性確保を目指すとともに、本手法の油層適用条件も検討する。またマイクロ流路モデルを用いて不均質な多孔質媒体中での流体挙動を直接観察し、シリカナノ粒子および水・油挙動を評価することで本技術の増油機構の実態解明に貢献する。

3. 研究の方法

本研究では、シリカナノ粒子を用いた石油増進回収法における増油機構ならびに油層適用条件を明らかにするために、特殊コア試験およびマイクロ流路モデル実験を実施する。岩石試料には砂岩（親水性）もしくは石灰岩（中間～油濡れ性）を用いており、事前準備として岩石試料の基礎物性値（浸透率、孔隙率、細孔径分布等）の測定、および鉱物組成分析を行う。シリカナノ粒子にはアニオン性とカチオン性の試料を採用し、粒径は約 5nm、12nm、60nm の 3 種類を用いる。本研究では各種試験条件として、温度を 90℃以下、NaCl 塩水（模擬地層水）の塩分濃度を 40,000ppm 以下とし、圧入塩水中のシリカ含有濃度は 10,000ppm 以下とする。

コア掃攻試験（図 1）では、コアホルダに原油飽和と岩石をセットし、一次掃攻流体として模擬地層水を圧入する。油排出がなくなった後、二次掃攻流体としてシリカナノ粒子分散水を圧入することで増油効果および圧力挙動を確認する。次に、シリカナノ粒子による孔隙閉塞性の評価として、掃攻試験後の岩石試料を用いて、電子顕微鏡による孔隙観察、および水銀圧入法による孔径分布測定を行う。また、マイクロ波窒素プラズマ発光分光分析により、掃攻試験時における排出流体中のシリカ濃度を経時的に測定することで、岩石中でのシリカナノ粒子の輸送性や岩石表面への吸着性も評価する。その後、コア試験結果に基づき、残留油回収の主要因と考えられる岩石表面の濡れ性、および油水間の界面張力の評価を行い、増油機構に対する各要素の影響を評価する。シリカナノ粒子分散水による岩石掃攻後の濡れ性を調べるために、油-水-岩石間の静的接触角測定、および Amott テストを実施する。また、シリカナノ粒子による油置換効率の評価を行うために、ペンダントドロップ法を用いて油水間の界面張力測定を実施する。

マイクロ流路モデルを用いた流動試験（図 2）では、孔隙ネットワークが比較的規則的な形状（砂岩孔隙モデル）を使用する。流動試験では水相の含有シリカ濃度を変化させながら流体挙動を観察する。特に孔隙表面近傍でのシリカナノ粒子による油脱離の挙動を MATLAB 等による画像解析から評価する。

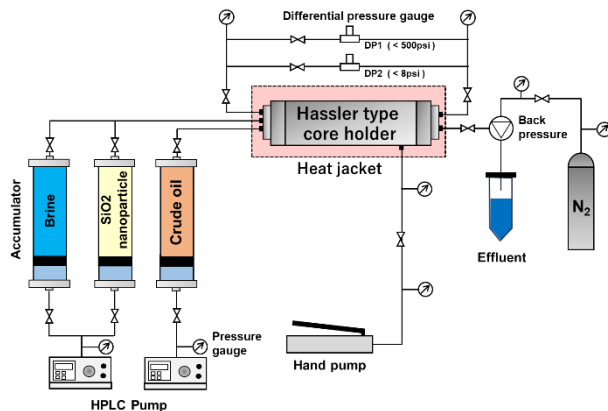


図 1 岩石コアを用いた掃攻試験装置の概略図

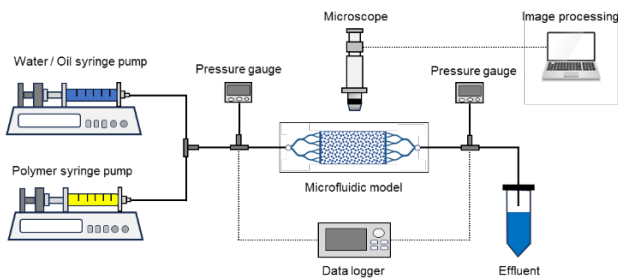


図 2 マイクロ流路モデルによる流動試験の概略図

4. 研究成果

シリカナノ粒子分散水による油回収率および岩石中でのシリカナノ粒子の輸送性を評価するために、コア掃攻試験を実施した。砂岩コア（孔隙率：約 21～31%、ガス浸透率：約 50～130md）を用いて、水相に NaCl 水溶液（30,000～40,000ppm）、油相に軽質原油を使用し、温度 60℃ 下においてアニオン性シリカナノ粒子分散塩水（一次粒子径：12nm、シリカ濃度：1,000ppm）による油掃攻試験を実施した。砂岩コアは粘土鉱物（主にカオリナイト）の含有率が異なる 3 種類の試料を用いており、細孔径分布は図 3 のように測定された。いずれのケースでもシリカナノ粒子分散水の圧入により、水攻法後の残留油の追加回収（約 2.0～4.5%）が確認された。本研究で用いた砂岩コアに対する流体圧入時の圧力挙動はほぼ定常状態を示したが、孔隙分布が不均質な一部のサンプルでは、緩やかな圧力上昇も確認された。

掃攻試験における排出液中のシリカ濃度の経時的評価から（図 4）、シリカナノ粒子分散水 1～2PV（Pore Volume：孔隙体積）圧入後は、ほぼ全量のシリカが定常的に排出されており、凝集による著しい孔隙閉塞も確認されていない。今回、模擬貯留岩とシリカナノ粒子の表面電位が同符号で十分大きな値となる pH 域では、安定的な圧入性が確保されており、DLVO 理論による粒子間の全相互作用の計算結果との相関も確認されている。一方で、カチオン性シリカナノ粒子を砂岩（表面電位が負）に圧入したケースでは、全量に近い量のシリカが岩石中から排出されないことも確認されている。

油-水-岩石間の静的接触角測定から、シリカナノ粒子分散水を用いた増油機構としては、岩石表面にシリカナノ粒子が吸着し薄膜を形成することで、岩石表面が強い水濡れ性に改質されたことが要因であることが示唆された。なお、本研究で使用した軽質原油の場合、シリカナノ粒子は油水間界面張力の低下による置換効率改善効果は確認されていない。そこでシリカナノ粒子による岩石表面の濡れ性改質プロセスをより詳細に評価するため、粒径の異なるアニオン性シリカナノ粒子（一次粒子径：約 5nm、60nm）を用いてコア掃攻試験を実施した。ここでは石灰岩コアを用いて、模擬貯留岩の水相には NaCl 水溶液（40,000ppm）、油相には重質原油もしくは軽質原油を採用し、初期濡れ性を油濡れ～中間濡れに調整した。まずシリカナノ粒子による油置換効果を確認するために Amott 試験および接触角測定を実施し、いずれの初期濡れ性の条件下でも強い水濡れ性への改質効果が認められた。なお、石灰岩試料では、塩水圧入時に溶解反応が生じることから、水相中の高 pH シフトや 2 価カチオン等の共存イオンの存在により、シリカナノ粒子の圧入性低下や岩石表面の吸着量増加等への影響が懸念されたが、ナノ粒子の吸着や凝集等による著しい孔隙閉塞は確認されておらず、ナノ粒子による油回収率も約 3.4～6.5% が得られた。ナノ粒子による濡れ性改質は、ナノ粒子がブラウン運動をしながら油-水-岩石間に侵入し、ナノ粒子の岩石表面への吸着、および分離圧により油が岩石から剥離することが想定されたため（図 5）、既往研究を参考にオルンシュタイン・ゼルニケ方程式を用いて、ナノ粒子濃度および粒子径等を変数とし分離圧を計算した。ナノ粒子濃度（1,000～10,000ppm）の増加と粒子径の減少に伴い分離圧が上昇し、Amott 測定による濡れ性改質効果との相関も一部確認された。しかし、ナノ粒子分散水中の初期濃度との強い相関は認められず、今後は実際に油-水-岩石間に侵入した局所的な体積濃度を明確に評価する必要性が生じた。今回マイクロ流路モデルを用いてシリカナノ粒子圧入時の流体挙動を評価するため、砂岩貯留岩を模した孔隙ネットワークモデルのマイクロ流路モデルを採用し、孔隙の表面濡れ性が親水性と疎水性の 2 種類を用いた。コア掃攻試験や濡れ性

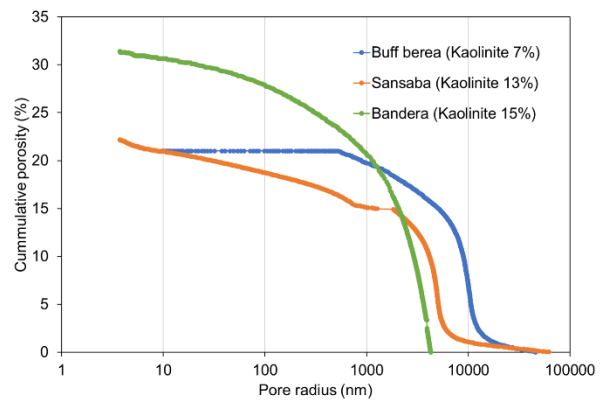


図 3 砂岩試料の細孔径分布

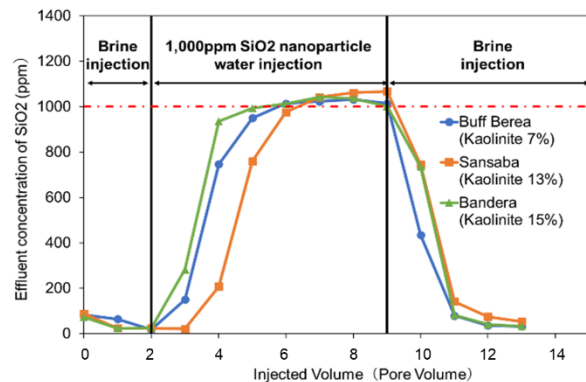


図 4 掃攻試験における排出液中のシリカ濃度

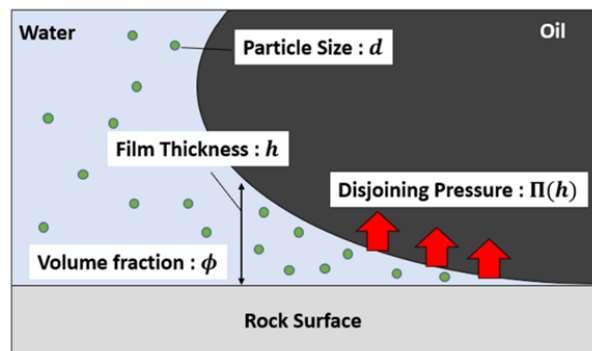


図 5 油-水-岩石間にナノ粒子侵入時の分離圧

今回マイクロ流路モデルを用いてシリカナノ粒子圧入時の流体挙動を評価するため、砂岩貯留岩を模した孔隙ネットワークモデルのマイクロ流路モデルを採用し、孔隙の表面濡れ性が親水性と疎水性の 2 種類を用いた。コア掃攻試験や濡れ性

改質評価の結果から、石油増進回収に有効な圧入塩水中のシリカ含有濃度 1,000～5,000ppm に調整し、軽質原油で飽和した各マイクロ流路モデル内で流体挙動評価を行った。マイクロ流路モデル表面の初期濡れ性の違いにより、ナノ粒子含有塩水圧入時の油排出挙動や残留油分布に影響があることが観察され、油排出挙動については比較的高い浸透率（300～500mD）を有する岩石コア（砂岩、石灰岩）での掃攻試験や Amott 測定による濡れ性評価試験結果との相関が一部確認された。一方で、数値シミュレーションモデル構築や高精度化による広域流動評価に向けては、シリカナノ粒子の固液界面でのより詳細な吸脱着挙動解析や相対浸透率の計算が求められており、本成果に基づき、機械学習を用いた相対浸透率曲線の推定や、貯留岩から成形した岩石薄片サンプルでの流動実験による流体挙動直接観察システムの構築を進めている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件／うち国際共著 3件／うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Kazunori Abe, Khwaja Naweed Seddiqi, Jirui Hou, Hikari Fujii	4. 巻 9(7)
2. 論文標題 Experimental Performance Evaluation and Optimization of a Weak Gel Deep-Profile Control System for Sandstone Reservoirs	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 7597-7608
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsomega.3c10244	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 Ragheed Alali, Kazunori Abe, Khwaja Naweed Seddiqi, Hikari Fujii	4. 巻 13(13)
2. 論文標題 Effect of Carbon Dioxide Injection on Limestone Permeability Damage Induced by Alumina Nanoparticles for Enhanced Oil Recovery Applications	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 7446
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/app13137446	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 -

1. 著者名 Abe Kazunori, Negishi Keisuke, Fujii Hikari	4. 巻 37(10)
2. 論文標題 Experimental Investigation of the Effects of the Sizes and Concentrations of SiO ₂ Nanoparticles on Wettability Alteration and Oil Recovery	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Energy & Fuels	6. 最初と最後の頁 7122-7129
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.energyfuels.3c00415	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 -

1. 著者名 Mahdi Zabihullah, Abe Kazunori, Seddiqi Khwaja Naweed, Chiyonobu Syun, Fujii Hikari	4. 巻 16
2. 論文標題 Increasing Recoverable Oil in Northern Afghanistan Kashkari Oil Field by Low-Salinity Water Flooding	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Energies	6. 最初と最後の頁 534 ~ 534
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/en16010534	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 Zabihullah Mahdi, Kazunori Abe, Khwaja Naweed Seddiqi, Hikari Fujii	4．巻 -
2．論文標題 Waterflooding Technique to the Kashkari Oilfield in the North Part of Afghanistan	5．発行年 2021年
3．雑誌名 Atlantis Highlights in Chemistry and Pharmaceutical Sciences	6．最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2991/ahcps.k.211004.018	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 Kazunori Abe, Taisuke Inomata, Shigemi Naganawa, Hikari Fujii	4．巻 -
2．論文標題 Experimental Study on the Effect of Oil Recovery and Transportability Through the Rock Core Using SiO2 Nanoparticles Fluid for Sandstone	5．発行年 2021年
3．雑誌名 Atlantis Highlights in Chemistry and Pharmaceutical Sciences	6．最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2991/ahcps.k.211004.001	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 -

〔学会発表〕 計19件（うち招待講演 1件／うち国際学会 5件）

1．発表者名 アルアリラギード，阿部一徳，藤井光
2．発表標題 機械学習を用いた相対浸透率推定とコアフラッドシミュレーション
3．学会等名 令和6年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2024年

1．発表者名 Khwaja Naweed Seddiqi, Kazunori Abe, Jirui Hou
2．発表標題 Decision-Making Technique for Water Shutoff Using Random Forests and its Application in High Water Cut Reservoirs
3．学会等名 2nd Edition of International Conference on Oil, Gas, and Petroleum Engineering（国際学会）
4．発表年 2023年

1．発表者名 Kazunori Abe, Khwaja Naweed Seddiqi, Katsuaki Fujii, Hikari Fujii
2．発表標題 Improvement of the performance of low-salinity water flooding on oil recovery for sandstone reservoirs in Northern Afghanistan Kashkari oil field
3．学会等名 2nd Edition of International Conference on Oil, Gas, and Petroleum Engineering (国際学会)
4．発表年 2023年

1．発表者名 Khwaja Naweed Seddiqi, Kazunori Abe
2．発表標題 Optimization and Performance Evaluation of a Polymer Gel Plugging Profile Control System on High Water-Cut Reservoirs
3．学会等名 42nd International Conference on Ocean, Offshore and Arctic Engineering (国際学会)
4．発表年 2023年

1．発表者名 Ragheed Alali, Kazunori Abe, Keisuke Negishi, Hikari Fujii
2．発表標題 Effects of size and concentration of silica nanoparticles on wettability alteration and oil recovery
3．学会等名 令和5年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2023年

1．発表者名 三浦康平, 阿部一徳, 藤井光
2．発表標題 疎水性マイクロ流路モデルを用いた濡れ性改質効果の可視化
3．学会等名 令和5年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2023年

1．発表者名 藤井克旭，阿部一徳，セーデキカワジャナウィード，藤井光
2．発表標題 アフガニスタン北部Kashkari 油田における低塩分濃度水攻法の適用性評価
3．学会等名 令和5年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2023年

1．発表者名 高岡 由貴，阿部 一徳，藤井 光，長縄 成実
2．発表標題 低塩分濃度水攻法における水相成分に基づく濡れ性改質メカニズムの検討
3．学会等名 令和4年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2022年

1．発表者名 Zabihullah Mahdi, Kazunori Abe, Khwaja Naweed Seddiqi, Shigemi Naganawa, Hikari Fujii
2．発表標題 Water-Based Oil Recovery Technique on Sandstones of Kashkari Oil Field in Northern Afghanistan
3．学会等名 令和4年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2022年

1．発表者名 根岸 慶輔，阿部 一徳，藤井 光，長縄 成実
2．発表標題 炭酸塩岩を対象とした SiO ₂ ナノ粒子分散液による濡れ性改質メカニズムの検討
3．学会等名 令和4年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2022年

1．発表者名 Ragheed Alali, Kazunori Abe, Taisuke Inomata, Shigemi Naganawa, Hikari Fujii
2．発表標題 Effects of pH on The Transportability of Al ₂ O ₃ Nanoparticles in Carbonate Rocks for EOR application
3．学会等名 令和4年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2022年

1．発表者名 根岸 慶輔, 阿部 一徳
2．発表標題 粒子径の異なる SiO ₂ ナノ粒子分散液による濡れ性改質作用の検討
3．学会等名 第51回石油・石油化学討論会（函館大会）
4．発表年 2021年

1．発表者名 高岡 由貴, 阿部 一徳
2．発表標題 低塩分濃度水攻法における圧入水の塩構成およびpHが炭酸塩岩コアの濡れ性および圧力挙動に与える影響
3．学会等名 第51回石油・石油化学討論会（函館大会）
4．発表年 2021年

1．発表者名 猪俣 泰祐, 阿部 一徳
2．発表標題 砂岩中の粘土鉱物が SiO ₂ ナノ粒子の透過性および油置換効率に与える影響
3．学会等名 第51回石油・石油化学討論会（函館大会）
4．発表年 2021年

1 . 発表者名 Zabihullah Mahdi, Kazunori Abe, Khwaja Naweed Seddiqi, Hikari Fujii
2 . 発表標題 Waterflooding Technique to the Kashkari Oilfield in the North Part of Afghanistan
3 . 学会等名 5th International Conference on Chemical Investigation and Utilization of Natural Resources (国際学会)
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 Kazunori Abe, Taisuke Inomata, Shigemi Naganawa, Hikari Fujii
2 . 発表標題 Experimental study on the effect of oil recovery and transportability through the rock core using SiO ₂ nanoparticles fluid for sandstone
3 . 学会等名 5th International Conference on Chemical Investigation and Utilization of Natural Resources (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 根岸 慶輔, 阿部 一徳, 藤井 光, 長縄 成実
2 . 発表標題 炭酸塩岩を対象としたSiO ₂ ナノ粒子による増油効果への影響及び岩石透過性の評価
3 . 学会等名 令和3年度石油技術協会春季講演会
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 高岡 由貴, 阿部 一徳, 藤井 光, 長縄 成実
2 . 発表標題 低塩分濃度水攻法における圧入水のイオン成分及びpHが炭酸塩岩コアの濡れ性に与える影響
3 . 学会等名 令和3年度石油技術協会春季講演会
4 . 発表年 2021年

1．発表者名 猪俣 泰祐，根岸 慶輔，阿部 一徳，藤井 光，長縄 成実
2．発表標題 SiO2ナノ粒子を用いた石油増進回収における砂岩中の粘土鉱物がSiO2ナノ粒子の透過性に与える影響
3．学会等名 令和3年度石油技術協会春季講演会
4．発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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			
タイ	チュラロンコン大学	カセサート大学		