

RN-222 PARA DETERMINAÇÃO DA SATURAÇÃO DE ÓLEO RESIDUAL EM RESERVATÓRIOS DE PETRÓLEO.

Jaqueline Martins de Paulo¹, Zildete Rocha¹, Rubens Martins Moreira¹

¹ CDTN/CNEN, R. Professor Mário Werneck, S/N, Caixa Postal 941 CEP: 30123-970,
jmp@cdtn.br, rochaz@cdtn.br, rubens@cdtn.br

O uso de traçadores para a obtenção de informações sobre o processo de produção do petróleo em um reservatório vem se ampliando em função dos importantes ganhos de rendimento que possibilita. A necessidade de saber a quantidade de óleo residual presente nos reservatórios (*SOR*) conduziu ao desenvolvimento e aplicação de métodos especiais com traçadores. Neste ramo os traçadores radioativos são vantajosos, entre outras razões por possibilitar que pequenas quantidades sejam empregadas, sem perturbar as operações de rotina do campo de produção. Mais particularmente, o emprego de um radioisótopo natural, como o ²²²Rn, é ainda mais interessante por já ocorrer nas rochas do reservatório. Esta possibilidade instigante vem estimulando várias pesquisas para que a técnica se torne operacional. Pretende-se neste trabalho definir e validar uma metodologia para medição do coeficiente de partição do ²²²Rn que forneça respostas acerca da quantidade de óleo residual presente na rocha do reservatório.

Palavras-Chave: Traçadores de partição, saturação de óleo residual, reservatórios, recuperação secundária, Radônio-222.

Abstract – The scope of tracer methods intended to extract information about production processes in oil reservoirs is broadening due to the significant returns they allow. The necessity of an accurate knowledge about the residual oil saturation (*SOR*) has induced the development and application of special tracer methods. Radioactive tracers are quite useful for this purpose, among other reasons because they require the injection of minimal amounts, with no disturbance of the oil field routine operations whatsoever. More particularly, the use of the gaseous radioisotope ²²²Rn is of a special interest since it is naturally present in the rock formations of the reservoir. This appealing possibility has stimulated a lot of research work aiming at making operational this technique. It is the purpose of this paper to define and validate a methodology for the measurement of the partition coefficient of ²²²Rn that will answer the question about the value of the residual oil remaining in the rock formation of the oil reservoir.

Keywords: keyword 1, keyword 2, keyword 3

1. Introdução

O petróleo é encontrado na natureza impregnado em rochas porosas denominadas reservatórios. Normalmente encontra-se em camadas de gás natural, hidrocarbonetos e água, que estão submetidas a grandes pressões.

A perfuração de um poço cria um caminho para que a pressão impulsione naturalmente o gás, os hidrocarbonetos ou a água. Este estágio do processo de recuperação é chamado recuperação primária. Em reservatórios com baixas pressões internas, ou quando a pressão inicial diminui após algum tempo de extração, podem-se utilizar algumas técnicas de recuperação conhecidas como recuperação secundária, onde um fluido (comumente a água) é injetado em um poço de modo a forçar o deslocamento do óleo residente na direção dos poços de produção (Dias, 2001). O uso de traçadores adicionados ao fluxo de injeção, é capaz de fornecer informação de grande importância, como o caminho percorrido pelo petróleo durante a fase de extração ou a quantidade de óleo presente como fase imóvel em um reservatório, que é denominada Saturação de Óleo Residual (SOR). A necessidade de obter esse tipo de informação conduziu ao desenvolvimento e aplicação de testes com traçadores. Para isto devem ser usados traçadores que se distribuam entre as fases líquida e oleosa, denominados traçadores de partição, que podem ser químicos ou radioativos.

A principal desvantagem do uso de traçadores químicos está relacionada com os baixos limites de sensibilidade dos métodos de dosagem. Assim é necessário injetar um grande volume de traçador, o que dificulta a operação. Já os radiotraçadores além de serem injetados em quantidades muito pequenas, facilitando consideravelmente as operações em campo, podem ser medidos por detectores extremamente sensíveis.

Foram descartadas em nosso trabalho as opções pelo uso de traçadores químicos e radiotraçadores de metais de transição emissores gama para a determinação da SOR, os últimos porque implicam em questões de radioproteção. Com base nas razões já expostas, optou-se pelo uso do radônio como traçador de partição, inclusive porque sua concentração em água já é medida desde há muito tempo por diferentes métodos e detectores [Machaj, 2004].

Reservatórios de petróleo estão envolvidos em formações rochosas que, em grande parte, determinam seus minerais e por conseguinte os radionuclídeos contidos. A água associada a essas formações frequentemente tem elementos tais como cálcio, estrôncio, bário e rádio preferencialmente dissolvidos [Matta, 2001]. A radioatividade natural oriunda dos elementos formados pelo decaimento do ^{238}U e do ^{232}Th produzem os gases ^{222}Rn (radônio) e o ^{220}Rn (torônio), respectivamente, os quais são bastante solúveis em água [Hamlat, 2003]. A presença do ^{222}Rn em água conduziu ao desenvolvimento da utilização deste elemento como traçador natural, pois este apresenta partição entre as fases aquosa e oleosa em proporções fixas. Esta razão, denominada coeficiente de repartição K_p , qual deve ser bem conhecida para ser possível aplicar o método.

Pretende-se com esse trabalho caracterizar o radônio como traçador de partição a ser utilizado para determinar a saturação de óleos residuais em reservatório de petróleo e em seguida medir seu coeficiente de partição.

2. Metodologia

Para atingir os objetivos propostos no projeto em que o presente trabalho se insere, é necessário fazer medidas da concentração de radônio em água usando as seguintes técnicas experimentais:

- Medidas de atividade de radônio via célula de Lucas;
- Uso da técnica FIA (Flow Injection Analysis).

Esta última técnica é utilizada para medidas de coeficientes de partição K_p 's. Trata-se de um método no qual uma fase oleosa e outra aquosa passam através de um tubo capilar em forma de serpentina onde são expostos a um contato eficiente que favorece a partição.

Quando o traçador de partição está inicialmente presente apenas na fase aquosa, rapidamente obtém-se um equilíbrio entre as duas fases. Após o equilíbrio ter sido atingido, as duas fases são separadas por gravimetria e a concentração do traçador é medida nas amostras de óleo e de água separadamente [Zemel, 1995]. Um esquema simplificado do método é mostrado na Figura 1.

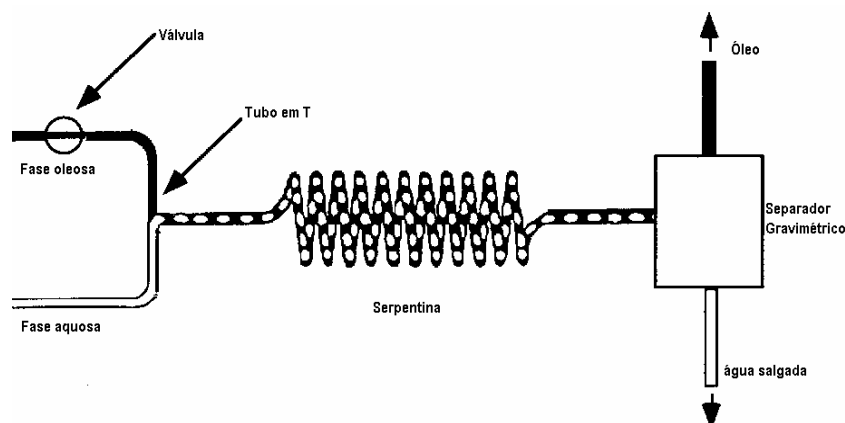


Figura 1. Esquema do método FIA para medidas de K_p

1. 2.1. O Radônio

O ^{222}Rn é um gás nobre quimicamente inerte que ocorre naturalmente nas rochas e é formado pelo decaimento alfa do ^{226}Ra que encontra-se associado às rochas e solo. Ambos fazem parte da série de decaimento do ^{238}U . Deste modo o radônio é continuamente produzido no solo pelo decaimento do ^{226}Ra (meia-vida $t_{1/2} = 1600$ anos), com o qual entra em equilíbrio secular. Ou seja: após um certo tempo (cerca de 1 mês no presente caso) o ^{222}Rn praticamente atinge a mesma atividade do ^{226}Ra , atividade esta que permanece virtualmente constante.

O ^{222}Rn produzido, normalmente não se ioniza na água possuindo assim, mais mobilidade do que outros elementos da série de decaimento do ^{238}U . Ele é capaz de percolar através do solo e da rocha e dissolver-se na água, da qual é facilmente removido por degasagem.

Segundo Nelson e col. (1983), as concentrações de radônio variam de 0.37 a 370 Bq/L, em função da concentração média de urânio, que é uma característica da geologia de cada região.

O ^{222}Rn é um emissor alfa com energia de 5,48 MeV, possui uma meia vida de 3,8 dias e constante de decaimento de $0.0001258 \text{ min}^{-1}$. Seu decaimento produz uma série de núclídeos de curta meia vida (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po) que decaem para o ^{210}Pb ($t_{1/2} = 21,4$ anos). Dois dos seus filhos ^{214}Po e ^{214}Bi são emissores alfa com energias de 5,5 MeV e 7,69 MeV respectivamente. Já o ^{214}Bi e o ^{214}Pb são emissores beta.

Algumas variáveis físicas como pressão e temperatura influenciam diretamente na concentração de radônio em água. Este gás é extremamente volátil e, portanto é facilmente liberado quando dissolvido em água. Sua solubilidade decresce com o aumento da temperatura, conforme mostrado na Tabela 1.

Tabela 2. Solubilidade do ^{222}Rn em água a diferentes temperaturas.

Temperatura (°C)	Solubilidade (cm^3/kg)
0	510
20	230
30	169

Devido à não polaridade do radônio, ele apresenta uma alta tendência para partição entre fases oleosas e aquosas. O coeficiente de partição linear (K_p) entre as fases oleosa e aquosa é definido como: $K_p = C_{\text{Rn,o}} / C_{\text{Rn,a}}$, onde $C_{\text{Rn,o}}$ é a concentração do radônio na fase oleosa, e $C_{\text{Rn,a}}$ é a concentração do radônio na fase aquosa (Davis, 2002). Assim, quanto menor o teor de ^{222}Rn na água do reservatório (teor que seria esperado pelo equilíbrio secular), maior a quantidade de óleo presente. Esta é a base para o uso do ^{222}Rn como traçador para a estimativa da saturação de óleo residual.

2.2 Resultados esperados

Esta etapa do projeto pretende-se caracterizar o radônio como traçador para determinação da saturação de óleo residual (SOR) em reservatório de petróleo, implementar a metodologia para sua detecção via célula de Lucas e medir seu coeficiente de partição.

2.3 Resultados preliminares

As primeiras análises de radônio em água já foram realizadas. Para implementação da metodologia os primeiros testes foram feitos em água de abastecimento público da cidade de Belo Horizonte. Em seguida, pretende-se fazer medidas da contração de radônio em poços de água subterrânea. As amostras de águas subterrâneas a serem analisadas serão coletadas em poços presentes na área do Campus da Universidade federal de Minas gerais e na área do CDTN/CNEN, a instituição dos autores. Esses poços fazem parte do Projeto Hidrogeológico da Bacia do Ribeirão Engenho Nogueira (PROHBEN), um programa de avaliações hidrogeoquímicas do qual o CDTN participa. A rota de coleta das amostras já está estabelecida e em operação (Figura 2).

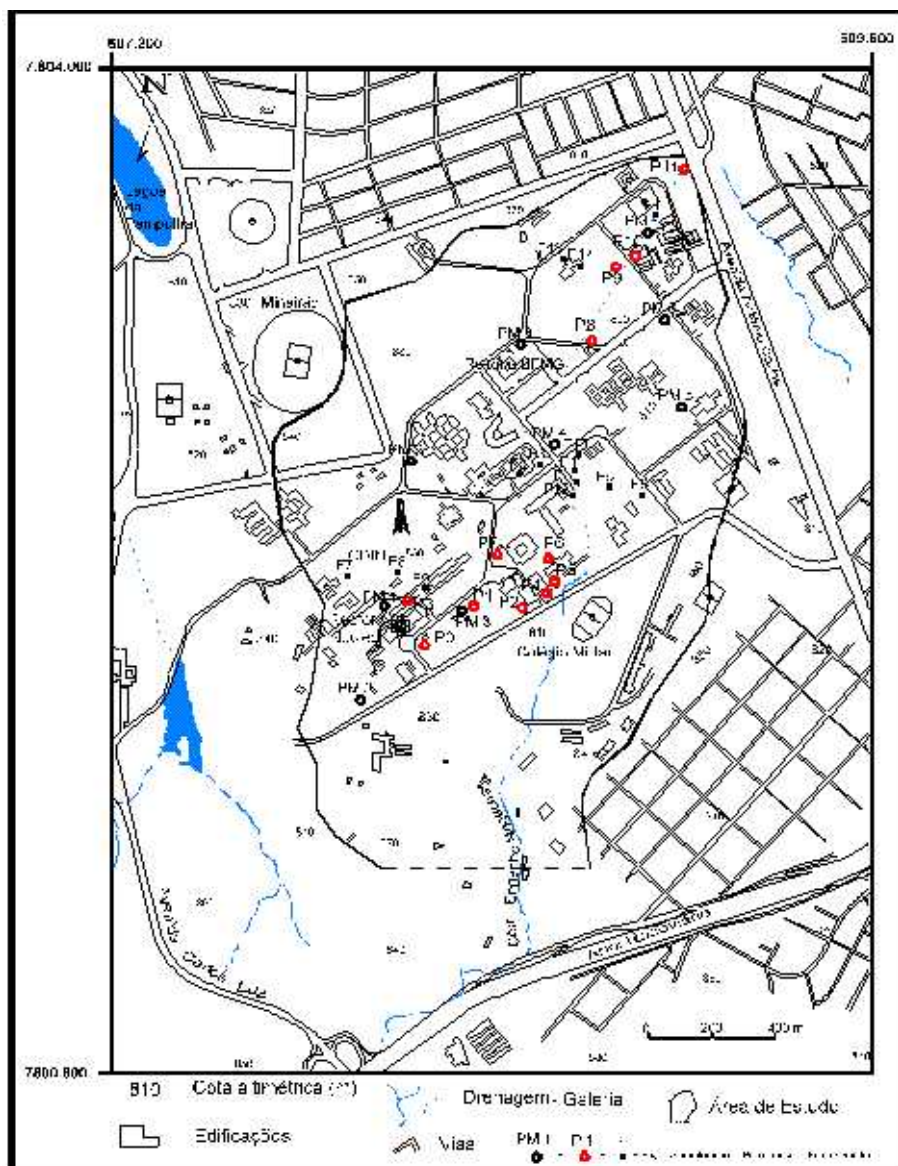


Figura 2. Poços de água subterrânea no campus da UFMG e CDTN/CNEN.

3. Técnicas Experimentais

As medidas da atividade do ^{222}Rn foram realizadas usando uma célula de Lucas com volume interno de (270 ± 3) mL modelo Pylon 300A (Figura 3), acoplada a um monitor portátil de radiação modelo Pylon AB-5 (Figura 4). O sistema possui eficiência de detecção de $(0,76 \pm 0,02)$ cpm/dpm e contagem de background típica de 1,35 cpm.



Figura 3. Célula de Lucas



Figura 4. Sistema de contagem de radônio

Esse sistema de contagem é usado para detectar radônio através das partículas alfa que ele emite. Para isso são usadas as células de cintilação, também conhecidas como célula de Lucas (Figura 3). A parede interna da célula de Lucas é revestida com sulfeto de zinco ativado com prata $ZnS(Ag)$ e possui uma janela transparente que é acoplada ao tubo fotomultiplicador. Seu princípio de funcionamento baseia-se no efeito de fluorescência que as partículas alfa produzem ao interagirem com a superfície do cintilador, emitindo pulsos luminosos que são coletados por uma fotomultiplicadora de alto ganho e, após a amplificação, os pulsos decorrentes da cintilação são transmitidos para o contador (AB-5).

Para implementação da metodologia foram feitas análises em água de abastecimento público. As amostras foram coletadas diretamente numa proveta que foi devidamente conectada no sistema de medição. O sistema possui uma unidade degasadora, que extrai o radônio da água e armazena na célula de Lucas [Costa, 2001]. Trata-se de um sistema fechado conforme mostrado na Figura 5.



Figura 5. Sistema para degasagem do radônio

As amostras foram borbulhadas com ar para que o radônio fosse arrastado para a célula de Lucas. Depois o sistema foi mantido fechado para que o equilíbrio radioativo entre o radônio e seus filhos (emissores de partículas alfa) fosse atingido. Em seguida a célula de Lucas foi conectada ao contador AB-5. O contador foi programado para registrar contagens a cada 10 min, com uma tensão de 580 V no modo contínuo do aparelho.

Quando as partículas alfa, produzidas pelas desintegrações do radônio, atingem a parede interna da célula uma cintilação é produzida. Os fótons provenientes destas cintilações são detectados, isto é: convertidos em uma corrente de elétrons que é amplificada por um tubo fotomultiplicador. O sinal elétrico resultante é armazenado no contador AB-5.

Existe uma relação direta entre o número de pulsos luminosos e a concentração (ou atividade) de gás radônio introduzido na célula. A eficiência (ϵ) de um sistema de detecção é a razão entre o número de pulsos observados (contados) por unidade de tempo e o número de eventos de emissão detectada por unidade de tempo. Considerando que numa célula de Lucas, após três horas o ^{222}Rn estará em equilíbrio com seus produtos de decaimento, particularmente com o ^{218}Po e o ^{214}Po , emissores alfa, a atividade total alfa na célula é equivalente a 3 vezes a atividade do ^{222}Rn , então a atividade do ^{222}Rn é obtida. A partir da atividade obtida, levando-se em consideração fatores de correção de decaimento pelos tempos de espera (A) e tempos de contagem (C) é possível expressar a concentração de ^{222}Rn em pCi/L, conforme mostrado na equação 1.

$$A_i \text{ (d.p.m)} = \frac{\text{NCPM} \times C}{3 \times 2.22 \times \epsilon \times V \times A} \quad (1)$$

A_i (d.p.m). - Concentração de ^{222}Rn expressa em pCi/L

NCPM - é a taxa de contagem no intervalo estabelecido menos o background (em contagens por minuto)

C - é o fator de correção para o decaimento durante o intervalo de contagem.

3 - Refere-se ao número de partículas alfa emitidas no decaimento do ^{222}Rn .

2.22 - fator de transformação de com para dpm:

$$1 \text{ g de Ra}^{226} = 1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ dps}$$

$$1 \text{ pCi} = 10^{-12} \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \times 10^{-12} = 0.037 \text{ dps}$$

$$1 \text{ pCi} = 0.037 \text{ dps} = 0.037 \times 60 \text{ s} = 2.22 \text{ dpm}$$

ϵ - é a eficiência de contagem (com/dpm) expressa em fração decimal.

V - é o volume de água amostrado (190 mL)

A - é o fator de correção para o tempo de decaimento entre a coleta da amostra e o início da contagem.

6. Resultados experimentais

Para implementação da metodologia para análise de ^{222}Rn amostras de água de abastecimento público e do poço P3 (Figura 2) foram contadas por um período de 13 horas. Assim foi possível fazer o levantamento de curvas padrões características, conforme especificado no manual do aparelho (AB-5). As curvas obtidas são apresentadas nas Figuras 6 e 7.

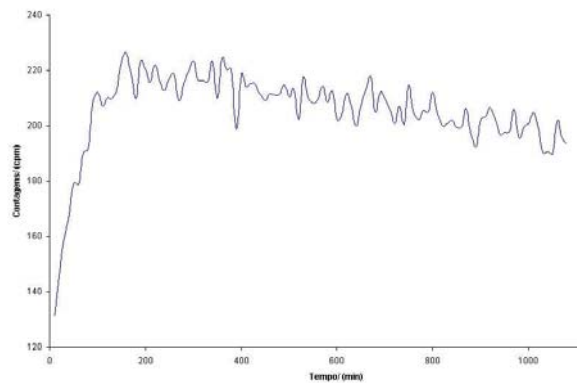


Figura 6. Medidas de ^{222}Rn em água de abastecimento público.

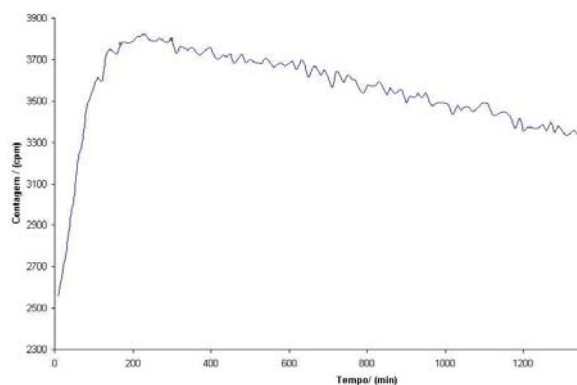


Figura 7. Medidas de ^{222}Rn em água subterrânea

7. Conclusão

Os testes realizados permitiram definir a faixa de contagem que será aplicada para análise das próximas amostras. Optou-se por um tempo de 6 horas, que corresponde ao tempo necessário para que o radônio atinja o equilíbrio radioativo com seus filhos.

A partir da análise dos dados foi possível calcular a atividade de radônio na água de abastecimento público e na água subterrânea, sendo estas equivalentes a 8,74 Bq/L e 170,4 Bq/L, respectivamente. Nelson e col. (1983), indicam que em geral as concentrações de radônio em água subterrânea variam de 0,37 a 370 Bq/L de acordo com a concentração média de urânio no solo, que é relacionado com a composição geológica de cada região. Conclui-se portanto que tanto a água de abastecimento público com a água subterrânea amostrados no CDTN/CNEN apresentam teores mais elevados do que a média geral.

8. Referências

- BONOTTO, D. M.; Doses from ^{222}Rn , ^{226}Ra , and ^{228}Ra in groundwater from Guarani aquifer, *South America. J. Environ. Radioactivity*, v. 76, n. 3, p. 319-335, 2004.
- DIAS, C.M. *Técnicas de integração reduzida para simulação de problemas não Lineares de Transporte pelo método de elementos finitos*. Tese de Doutorado em Engenharia Civil – Universidade Federal do Rio de Janeiro, R.J., 2001.
- HAMLAT, M.S.; KADI, H.; DJEFFAL, S.; BRAHIMI, H. RADON Concentrations in Algerian oil and gas industry. *Applied Radiation and Isotopes*. v. 58, n. 1, p. 125-130, 2003.
- HUNKELER, D.; HOEHN, E.; HOHENER, P. AND ZEYER, J. ^{222}Rn as a partitioning tracer to detect diesel fuel contamination in aquifers: laboratory study and field observations, *Environ. Sci. Technol.*, v. 31, n. 11, p. 3180-3187, 1997.
- LUCAS, H.F., Improved low-level alpha-scintillation counter for radon. *Rev. of Scientific Instruments*. v. 28, p. 680-683, 1957.
- MACHAJ, B.; BARTAK, J. Fast measurement of radon concentration in water with Lucas cell. *Nukleonika*. v. 49, n. 1, p. 29-31, 2004.
- MATTA, L.E.S.C, *Aspectos radiológicos ocupacionais relacionados à presença de Radionuclídeos naturais em estações de extração e produção de petróleo*. Tese Doutorado – Universidade Federal do Rio de Janeiro, 2001.
- NELSON, P.; RACHIELLE, R.; SMITH, A. Transport of radon in flowing boreholes at stripa Sweden. *Geophysics Res.* V. 88, n. B3), p. 2395-2405, 1983.
- SEMPRINI L, HOPKINS OS, TASKER BR. Laboratory, field and modeling studies of radon-222 as a natural tracer for monitoring NAPL contamination. *Transport in porous media*. v.38, p. 223-240, 2000.
- ZEMEL, B.; *Tracers in the oil field*. Elsevier Science, Amsterdam, 1995.