HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	岩層・炭層からのガス回収を目指して釧路南東部の白亜系砂質頁岩の性状
Author(s)	児玉, 淳一; 藤井, 義明; 福田, 大祐; 高橋, 徹; 菅原, 隆之; 末永, 弘; 佐藤, 晃; 松本, 裕之; 内田, 景己
Citation	資源・素材2015（松山）企画発表・一般発表講演集, 2015, 1409
Issue Date	2015-09-08
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/62721
Type	proceedings
Note	資源・素材2015（松山）―平成27年度資源・素材関係学協会合同秋季大会―, 2015年9月8日～10日, 愛媛大学, 松山市
File Information	MMIJ2015Matsuyama1409.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

企画講演
最近の岩盤工学および鉱山開発に関するトピック
2015年9月8日(火) 13:00 〜 16:10 第４会場 (EL24)

[1409] 【小企画】岩層・炭層からのガス回収を目指して 釧路南東部の白亜系砂質頁岩の性状 Characteristics of sandy shale -Cretaceous samples from southeastern Kushiro area-.

○児玉淳一[1], 藤井義明[1], 福田大祐[1], 高橋徹[1], 菅原隆之[1], 末永弘[2], 佐藤晃[3], 松本裕之[4], 内田景己[4] （1.北海道大学, 2.電力中央研究所, 3.熊本大学, 4.釧路コールマイン（株））

キーワード：白亜紀層, 砂質頁岩, 浸透率, 細孔径分布, X線CT

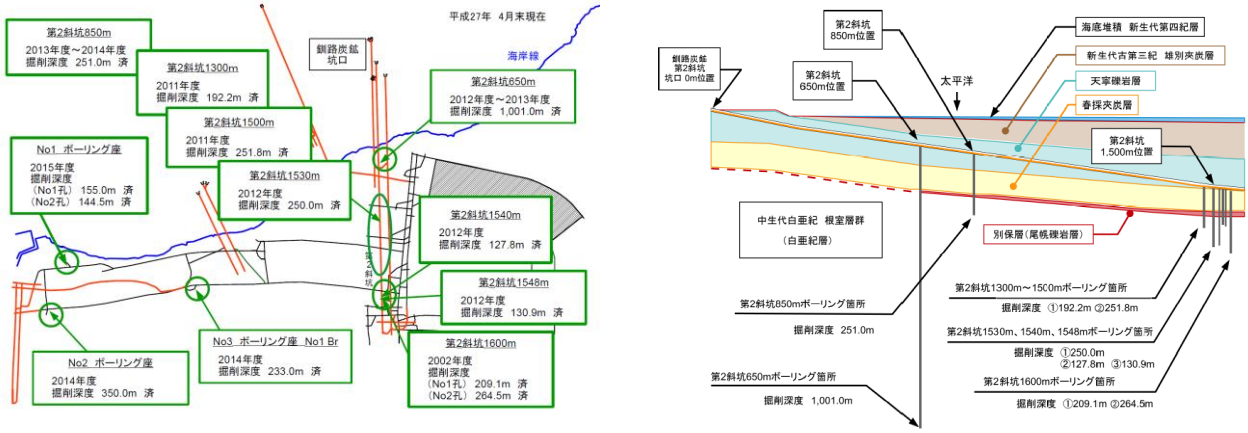
釧路コールマインにおけるメタンガスの開発のための基礎的データを得るために，白亜系岩盤層内の砂質頁岩を対象に，空隙性状の観察や浸透率などの物理的性質の測定を実施した。水銀圧ポロシメータにより細孔径分布について分析した結果，細孔径分布はシングルモーダルを示すが，ピークを示す細孔径は深度が大きいとやや小さいことがわかった。このことは，X線CTによる空隙の観察でも裏付けられ，深度が大きいと欠陥構造は少ないという結果が得られた。窒素ガスと水を流して浸透率を評価した結果，健全な状態の浸透率は10^{-19}〜10^{-18} m^2程度であり，極めて浸透率の低い岩石であることが明らかになった。しかし，割裂した場合の浸透率は著しく増加し，窒素ガスと水を用いた場合の浸透率は，それぞれ，10^{-14} 〜10^{-15} m^2，10^{-15}〜$10^{-17}m^2$となった。水銀圧ポロシメータ，X線CT，かさ密度から求めた空隙率はおおむね一致し，約8-12%の範囲であった。また，一軸圧縮強度と圧裂引張強度は，それぞれ約146MPa，約17MPaであり，本砂質頁岩は空隙体積の割には強度の大きな岩石であることがわかった。

©一般社団法人 資源・素材学会

1．はじめに

釧路コールマインでは，古第三紀層の下位に位置する白亜系の砂質頁岩層からメタンガスの継続的な湧出が認められている。このメタンガスをエネルギー資源として有効利用するには，白亜系の砂質頁岩層の空隙性状や浸透性を十分に把握し，賦存量と回収率を評価する必要がある。本研究では，釧路南東部の白亜系砂質頁岩（釧路砂質頁岩）を対象に，水銀圧入式ポロシメータおよびX線CTにより空隙性状の観察を行うとともに，空隙性状と賦存深度の関係について検討した。続いて，釧路砂質頁岩の含水特性を明らかにしたうえ，透水試験と透気試験を実施し，インタクトな試料に加えて破断面を有する試料の浸透率の測定を行った。さらに，空隙率を含むいくつかの物理的性質や力学的性質のばらつきについて調べた。

2．ボーリングコアの採取位置



(a) 平面図　　(b) 第2斜坑のボーリン断面図

Fig. 1　ボーリング孔の位置と掘削深度（2012年度～2015年4月末）

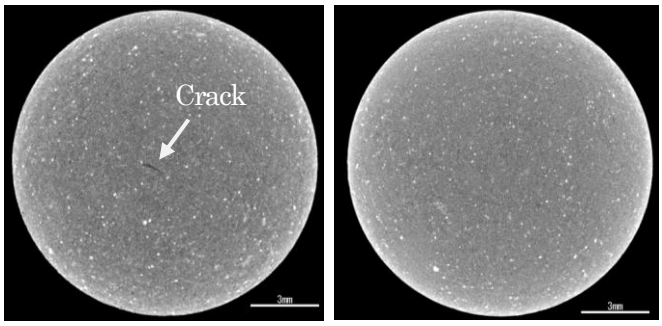
釧路コールマインにおいて，2002年度～2015年4月の間に掘削されたボーリング孔の位置と掘削深度をFig. 1に示す。第2斜坑では，坑口から650m～1600mの距離の位置に合計9本のボーリング孔が掘削されており， 2014年度からは広域的な調査のため，第2斜坑の西側に展開した3箇所のボーリング座において，合計4本のボーリング孔が掘削されている。今回報告する実験で用いたコアは，第2斜坑の1530m地点のボーリング孔（第5，6章），No.3ボーリング座のNo.1ボーリング孔（第3，5章），第2斜坑850m地点のボーリング孔（第4章）から採取したものである。

3．空隙性状の観察

No.3ボーリング座のNo.1ボーリング孔より採取した2つの深度のコアを対象に，水銀圧入式ポロシメータによる空隙分布の測定とマイクロフォーカスX線CTによる内部構造の観察を行い，空隙の性状を把握するともに，これに与える深度の影響について検討した。

3・1　マイクロフォーカスX線CTによる空隙の観察

直径46mmのボーリングコアから直径13.5mm，長さ50mm程度の試料を作製し，マイクロフォーカスX線CT(東芝製；TOSCANER31300μhd)を用いて，コア内部の観察を行った。(a)57.50m～57.96m，(b)195.90～196.43mの深度のコアに対して浅部から10mm程度の部分を対象に，シングルコーンビームにより476断面の撮影を行った。空間解像度は14μm×14μm×スライス厚22μmである。すべての断面ではないが，深度の浅いコアでは，Fig.2(a)のような線状の欠陥がある程度認められた。一方，深度の深いコアでは明確な欠陥は少なかった（Fig.2(b)）。



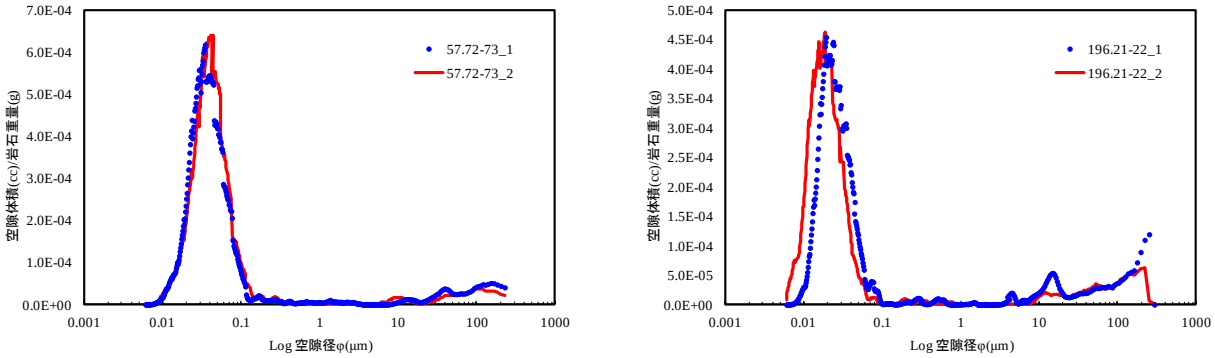
(a) 深度57.50m～57.96m　　(b) 深度195.90m～196.43m

Fig. 2　マイクロフォーカスX線CTによる内部構造の観察の一例

3・2　水銀圧入式ポロシメータによる空隙分布の測定

上に述べた深度の異なる2つのコアの(a)57.72m-57.73mと(b)196.21-196.22mの位置からそれぞれ試料を作製し，空隙径分布の測

定を行った。毛管圧の測定には，水銀圧入式ポロシメータであるポアサイザ 9320（島津製作所製）を用いた。ポロシメータとは空隙径分布の測定に用いられるものであり，岩石試料に水銀を圧入し，圧入圧力と圧入量から岩石内の空隙の寸法分布を評価する手法である [1),2)]。上記の試料から 1cm 立法程度の塊を取りだし，このポロシメータにより圧入水銀の圧力，体積を測定した。単位重量あたりの空隙体積と空隙径の関係を Fig.3 に示す。深度 57.72m-57.73m の部分の 2 点の測定結果（Fig.3 (a)）は互いに良く一致し，ともに 0.04 μm 付近にピークが認められる。一方，深度 196.21-196.22m の部分の 2 点の測定結果（Fig.3(b)）には若干違いが見られるものの，分布曲線の形状は類似しており，また両者のピークの位置はともに 0.019 μm 付近である。また，ともに明確なピークは上記の空隙径のみで認められ，空隙径はシングルモーダルの分布を示している。以上のことより，深度が大きいとピークを示す空隙径は小さいこと，空隙径の分布は比較的単純であることがわかる。なお，試料(a)，(b)の空隙径分布から求めた空隙率の平均値は，それぞれ 10.2%と 7.92%である。



(a) 57.72m-57.73m の部分　　(b) 196.21-196.22m の部分

Fig. 3　深度が異なる 2 箇所の空隙径分布

4　固有浸透率と空隙構造の関係

第 2 斜坑 850m の位置のボーリング孔より採取したコアを用いて，固有浸透率と空隙構造の関係について検討した。コアの採取深度は(A) 166.39-164.00m，(B) 175.11-175.23m，(C) 208.37-208.48m，(D) 208.48-208.59m，(E) 220.88-221.00m，(F) 247.18-247.29m，(G) 249.50-249.62m である。

4・1　含水特性

真空脱気しながら含水させたときの試料の重量の変化を Fig.4 に示す。いずれの試料ともに重量は少しずつ増加し，重量が一定になるまでに少なくとも 10 日以上要している。試料 C, D, F, G では 30 日以上経過した後も重量は明らかに増加している。同じ条件で測定した Berea 砂岩とコンクリートの重量は，それぞれ約 3 日と 1 日程度でほとんど変化しなくなる（熊本大学佐藤晃氏私信）。また，溶結凝灰岩では 50h 程度で重量変化が小さくなることが示されている [3)] したがって，今回用いた釧路砂質頁岩では空隙が入り組んだ構造であり空隙の性状が特異であると予想されるとともに，Fig.3 に示したように全体的に空隙系が小さい事が影響しているものと考えられる。

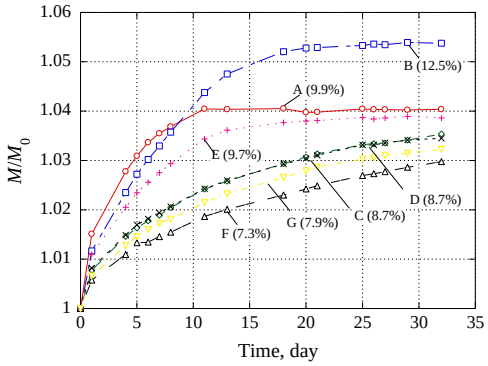


Fig. 4 含水に伴う重量の変化

4・2　透水試験による固有浸透率の評価

カーボンファイバー製の圧力容器内に岩石試料を設置して，一次元透水試験を実施した。岩石試料のすべての側面はエポキシ系の樹脂で被覆した。そして，開放面である端面とポーラスストーンを介してドレインパイプを設置したもう一方の端面との間にシリンジポンプにより差圧を与えた。

固有浸透率の評価結果を Fig.5 に示す。参考のために測定した Berea 砂岩とコンクリートの結果も示している。釧路砂質頁岩の固有浸透率は非常に小さく，k=10^{-18}～10^{-19} m^2 のオーダーであった。ただし，試料 E のみが明らかに大きな値（ k=1.85×10^{-15} m^2）を示した。

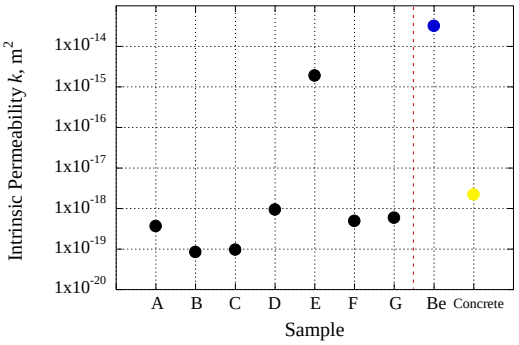


Fig. 5 透水試験で評価した固有浸透率

4・3　産業用 X 線 CT による密度・空隙率分布の評価

産業用 X 線 CT を用いて，乾燥状態と含水飽和状態の 2 つの状態にある

試料 A～G の CT 画像の撮影を行った。スキャンエリアとスライス厚は，それぞれ 150mm と 2mmであり，マトリックスサイズは 2048×2048 である。管電圧を 300kV に設定し，シングルモードおいてフルスキャンを実施した。次に，乾燥状態と含水飽和状態の差画像から求めた CT 値の増分（ΔCT）から各ボクセルの空隙率を算出した。産業用 X 線 CT では，空気と水の CT 値はそれぞれ，-1000, 0 に設定されている。したがって，空隙率ϕ は次式で算出することができる。

$$\phi = \frac{\Delta CT}{1000} \tag{1}$$

Fig.6 は，乾燥状態の CT 画像（上段）と両状態の差画像から(1)式に従い求めた空隙率の分布（下段）の例である。乾燥状態の CT 画像では黒色になるほど密度が低いことを意味するが，構成鉱物の密度が低いことに加え，空隙が多いと密度が低くなると予想される。もし，岩石が均質であると仮定すれば密度が小さくなるほど空隙率が大きいことを表している。一方，乾燥状態と含水飽和状態の差画像では，暖色になるほど空隙率が大きいことを表している。空隙内の空気が水に置換されるほどΔCT が大きくなり，水が浸透し得る外部と連結した空隙（有効空隙率）が大きく評価される。

Fig.6(a)は，試料 B の結果であるが，乾燥状態の CT 画像より，撮影した画像のおおむね右半分が低密度領域であることがわかる。そして，この低密度領域では空隙率が大きくなっており，水が浸入した有効空隙であることがわかる。これに対して，Fig.6(c)の試料 G の乾燥状態の画像中には高密度領域内に線状の低密度領域が存在する（図中の赤枠内）。しかし，この線状の低密度領域の周りの有効空隙率は小さく，しかも線状の低密度領域の有効空隙率は 0 に近い（図中の白枠内）。すなわち，この線状の領域はクラックなどのため低密度であるが，まわりの領域には空隙が少ないため水が浸透しづらくなっているクラックであると考えられる。Fig.6(b)は，他の試料に比べて著しく固有浸透率が大きかった試料 E の結果である。撮影した範囲では，固有浸透率が大きくなりそうな空隙の性状は認められなかったが，試料 G のように水が浸透しづらいクラックの存在も明確には認められなかった。

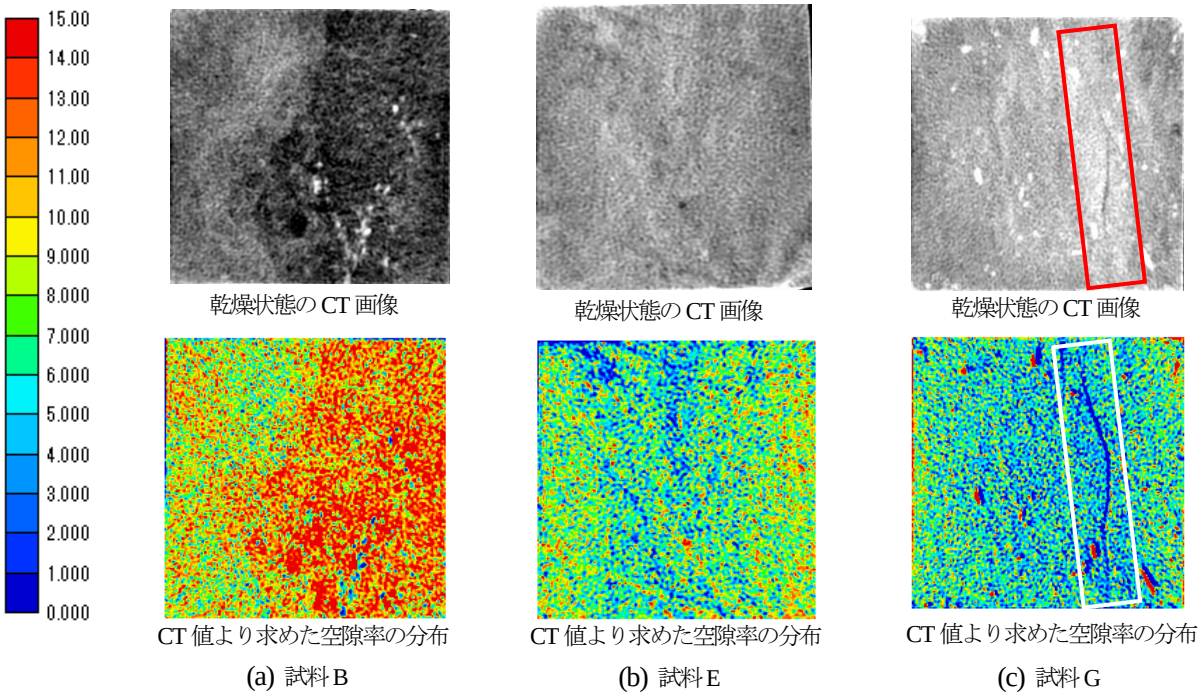


Fig.6 乾燥状態の CT 画像と乾燥状態と含水飽和状態の差画像の CT 値より求めた空隙率の分布

5．透気試験による固有浸透率の評価

第 2 斜坑 1530m 地点の深度 280.1～281.0 m のコア（コア#1）と No. 3 ボーリング座の No. 1 ボーリング孔の深度 195.90 m~196.43m のコア（コア#2）に対して透気試験を行い，固有浸透率を評価した。ガスは主にき裂内を移動している可能性があるため，破壊き裂を導入した試料も用意し，インタクトな岩石の固有浸透率に加えてき裂面の固有浸透率も評価した。なお，透気試験にはメタンガスを用いるべきであるが，安全性を考慮して窒素ガスを用いた。

5・1　健全な岩石の固有浸透率

直径 30 cm 高さ 60 cm の試料にエンドピースを取り付け，試料側面をシリコンシーラント（信越化学工業株式会社、一液型 RTV ゴム、KE3495）でコーティングした。さらに，その上から熱収縮チューブ（潤工社製、ジュンフロン FEP 熱収縮チューブ、NF300）で被覆してから超小型三軸セル（Alam et al., 2014）に試料を設置した。そして，材料試験機（インストロン社製、5500R、機械式、250 kN）とダブルプランジャポンプでそれぞれ，軸圧と封圧を作用させて静水圧の状態とした後，窒素ボンベから窒素ガスを注入した（Fig. 7）。注入圧は 0.4 MPa または 2 MPa である。

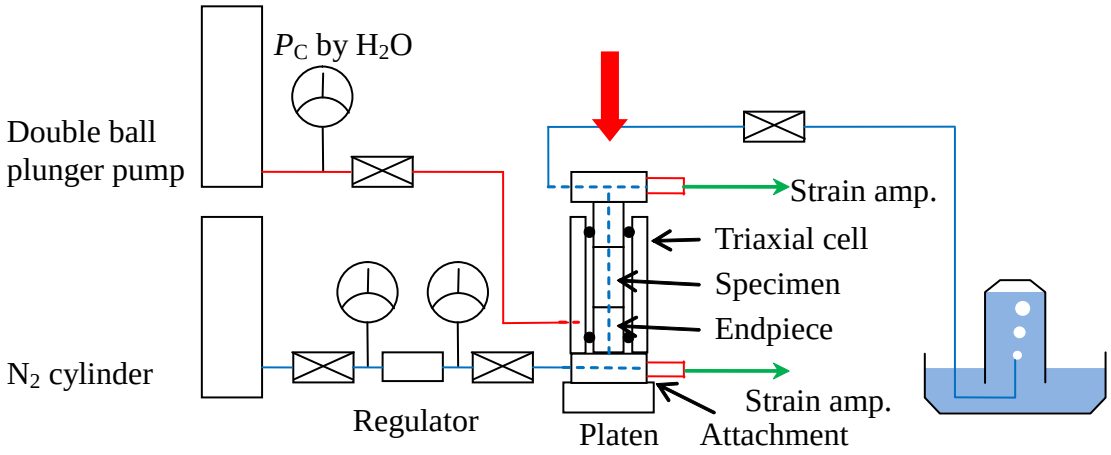


Fig.7 透気試験の概略

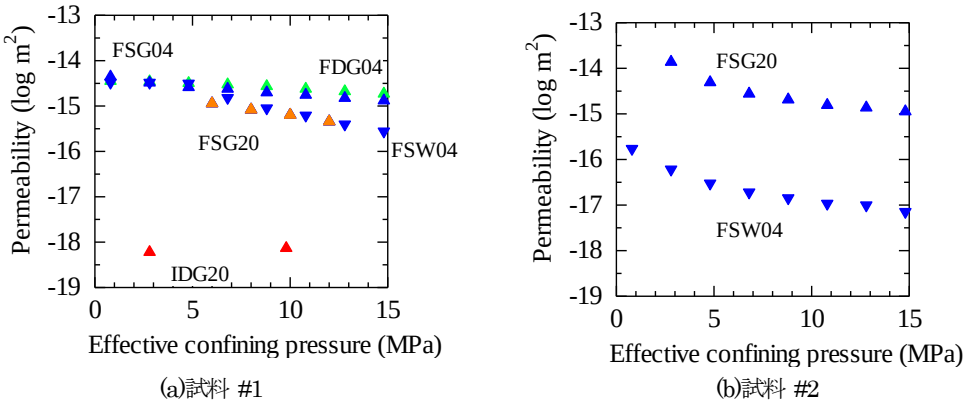


Fig.8 透気試験で評価した固有浸透率

注入圧が 2MPa のときの浸透率を Fig.8 中に赤三角で示す。固有浸透率は有効封圧に依存せず，10^{-18} m^2 程度（Fig. 8(a)中の IDG20）と極めて小さな値となった。この値は，４章の透水試験で得られた固有浸透率と一致しており，また，アメリカのシェールガスを胚胎する岩石[4]とほぼ同じである。

5・2　割裂した岩石の固有浸透率

上述したように，釧路砂質頁岩の固有浸透率は極めて小さいことがわかった。したがって，この白亜紀層からガスを回収するには岩盤を破砕する必要があると考えられる。また，もし白亜紀層より下位の層にガスが包蔵されているとしたら，白亜紀層は強力なキャップロックとして機能していると考えられ，ボーリング孔より湧出しているガスは白亜紀層内のき裂に沿って移動している可能性が高い。そこで，人工的に割裂した供試体に対して浸透試験を実施してみた。具体的には，圧裂引張試験により中央部に破断面を入れた試料に対して窒素の注入を行い，固有浸透率を評価した。なお，破断面を含水飽和させた試料も用意し，窒素の他に水を注入した試験も行った。

割裂した試料#1 の固有浸透率（Fig. 8(a)中の緑三角, FDG04）は，インタクトな試料（Fig. 8(a)中の赤三角, IDG20）の 1,000～10,000 倍ほどの値を示し，10^{-14}～10^{-15} m^2 のオーダーであった。ただし，破断面を水で飽和させた状態で，窒素を注入したり（Fig. 8,(a)中の上向き青三角と黄色三角，FSG04, FSG20）水を流したりしても（Fig. 8,(a)中の下向き青三角，FSW04）固有浸透率には大きな変化が見られなかった。一方，試料#2 では，含水飽和させた状態でガスを流した場合，試料#1 と同じオーダーの固有浸透率が得られたが（Fig. 8(b)中の上向き青三角, FSG20），試料#1 より大きな封圧依存性がみられた。破断面を水で飽和させて水を流した場合には，10^{-16}～10^{-17} m^2 程度のオーダーまで固有浸透率は低下した（Fig. 8(b)中の下向き青三角, FSW04）。来待砂岩では，破断面を有する試料の

固有浸透率は，封圧の増加に伴って大きく減少すること，有効封圧 5 MPa～15 MPa の範囲ではインタクトな試料とほぼ同様な値となること，気乾状態の試料にガスを流した場合の方が含水飽和状態の試料にガスを流した場合よりも固有浸透率は大きくなることなど，一般的に予想される現象が報告されている [5]。上述した釧路砂質頁岩の試料#1 の結果は，来待砂岩の結果とは異なり，かなり特異であると考えられる。今のところ原因は不明であるが，割裂した釧路砂質頁岩の透水性は特異な挙動を示す場合がある。

6．物理的性質と力学的性質のばらつき

第 2 斜坑の 1530m 地点から採取したボーリングコアに対して，有効空隙率などのいくつかの物理的性質の測定を行った。また，一軸圧縮試験と圧裂引張試験を行い，基本的な力学的性質を調べた。用いたコアの深度は 180.4～187.9m であるが，軸方向に沿う連続した開口き裂（181.9m～183.0m）や破砕帯などの存在によりコアが回収できない区間があった。このため，Fig.9 中に数字を記した比較的健全な部分から試料を製作した。採取位置の連続性から，試料は 1-8, 9-12, 13-15, 16-19, 20 の 5 つのグループに分けることができる。

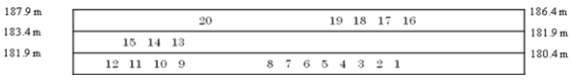
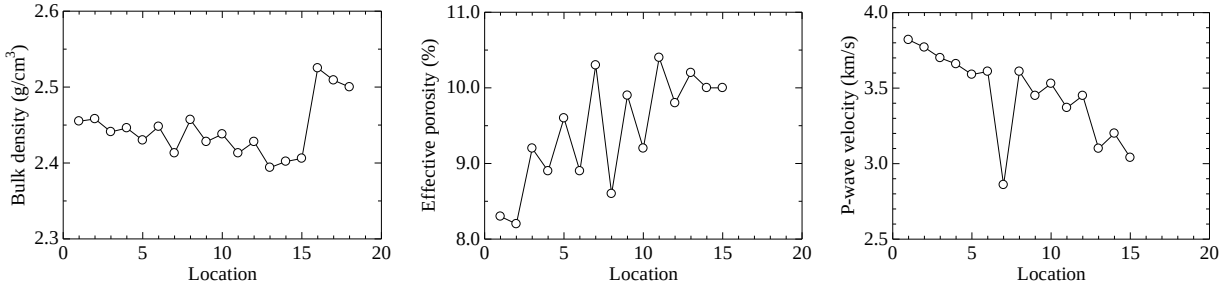


Fig. 9　試料の作製位置（第 2 斜坑 1530m ボーリングコア）



(a)かさ密度　(b)有効空隙率　(c)P 波速度

Fig. 10　かさ密度，有効空隙率，P 波速度の測定結果（第 2 斜坑 1530m ボーリングコア）

Table 1 物理的性質

	真比重	かさ密度 (g/cm³)	有効空隙率 (%)	熱伝導率 (W/mK)	P 波速度 (km/s)	S 波速度 (km/s)
試料数	3	18	15	1(3 回測定)	15	15
範　囲	2.60-2.62	2.39-2.53	8.2-10.4	1.97-1.99	2.86-3.82	1.94-2.80
平均値	2.61	2.44	9.5	1.98	3.45	2.25
標準偏差	0.008	0.036	0.71	0.008	0.275	0.248
変動係数(%)	0.31	1.48	7.47	0.40	7.97	11.02

かさ密度，有効空隙率，P 波速度と採取位置の関係は Fig.10 に示す通りであり，位置を表す数字が大きいほど深度は大きい。また，これらの 3 つを含めた 6 つの物性値とそのばらつきを Table 1 に示す。Fig.10 より，採取位置 1～15（およその深度 180.8m～183.2m）の範囲では，深度が増すと，かさ密度，P 波速度はわずかに小さくなり，逆に，有効空隙率はわずかに増加することがわかる。また，開口き裂を跨いだ 12 と 13 の間にそれほど大きな違いは見られないが，健全なコアが採取できなかった 15 と 16 の間でかさ密度は不連続的に増加しており，位置 7 の試料は他の試料に比べて P 波速度が極端に小さい。なお，真比重を測定した 3 つの試料の採取位置は 10,13,16 であるが，これらの真比重の差は小さいことから，15 と 16 の間のかさ密度の不連続的な増加は空隙の減少によるものと考えられる。以上のことより，釧路砂質頁岩に関して次のことがいえる。①3m程度の区間では，深度が増すと空隙率がやや大きくなることがある。②コアが回収できなかった部分を境に空隙率が不連続的に変化することがある。③き裂などの存在により，局所的に P 波速度が小さい領域がある。Table 1 中に示した変動係数を見る限り，有効空隙率と弾性波速度のばらつきは大きい。上述したように，これらのばらつきには物性値の深度依存性や局所的なき裂などの存在が大きく関係していると判断できる。なお，有効空隙率の範囲は 8.2-10.44%であった（Table 1）が，これは 4 章で述べた第 2 斜坑 850m の位置のボーリング孔より採取した深度 166.39-249.62m のコアの有効空隙率（7.3-12.5%）の範囲内にあり，また，3 章の空隙径の分布から評価した空隙率の大きさとも矛盾しない。これらのことより，調べた範囲内ではボーリング地点による有効空隙率の違いは小さいといえる。

Table 2 力学的性質

物性	一軸圧縮強度 (MPa)	ヤング率 (GPa)	ポアソン比	圧裂引張強度 (MPa)
平均値	146.4	22.3	0.14	16.5
試料数	5	4	4	5
標準偏差	4.20	1.56	0.067	2.40
変動係数(%)	2.87	7.00	47.9	14.54

一軸圧縮試験と圧裂引張試験から得られた力学的性質を Table 2 に示す。一軸圧縮試験の試料は 1,2,3,13,14 の位置から作製しており，圧裂引張試験の試料は 16,17,18,19,20 の位置から作製している。かさ密度の深度依存性（Fig.10(a)）から一軸圧縮試験の試料と圧裂引張試験の試料はやや空隙構造が異なると予想されるため一概にはいえないが，Table 2 中の変動係数を見る限り，一軸圧縮強度のばらつきに比べて圧裂引張強度のばらつきはかなり大きい。

7．まとめ

本研究では，釧路南東部の砂質頁岩を対象に，まず，空隙の性状を明らかにするとともに，空隙性状と賦存深度の関係について検討した。次に，含水特性を明らかにしたうえ，空隙構造と固有浸透率の関係について検討するとともに，破壊き裂の導入による浸透率の変化を明らかにした。最後に，有効空隙率などの物理的性質のばらつきについて検討した。得られた知見は以下の通りである。

1) 水銀圧入式ポロシメータから得られた空隙径分布より評価した有効空隙率，乾燥状態と含水飽和状態の産業用 X 線 CT 画像から評価した有効空隙率，水の浸透による試料の重量変化から評価した有効空隙率の大きさには明確な違いは無く，ボーリング孔の位置によらず有効空隙率は 7.3-12.5%の間にある。

2) 空隙径はシングルモーダルの分布を示し，空隙径の分布は比較的単純であるが，深度に 140m 程度の違いがある場合には，深度が大きくなると，ピークを示す空隙径が小さくなる。ただし，3m程度の深度の違いでは，深度が増すと有効空隙率がやや大きくなることがあり，また，破砕帯などを境に有効空隙率が不連続的に変化することがある。

3) 試料を含水飽和させるまでに 10 日以上もかかり，また，透水試験で評価されたインタクトな試料の固有浸透率は 10^{-18}～10^{-19} m^2 のオーダーである。この固有浸透率は透気試験で評価されたインタクトな試料の固有浸透率と一致し，アメリカのシェールガスを胚胎する岩石とほぼ同じ大きさである。これらのことは，釧路砂質頁岩の空隙構造が複雑であること，ガスの回収には岩石を破砕する必要があることを示唆している。

4) 産業用 X 線 CT により乾燥状態と含水飽和状態の試料の画像を撮影し，両者の差画像から有効空隙率の分布を評価した結果，密度が大きく空隙率が小さいと予想される領域中にある線状の低密度域の有効空隙率は小さい傾向にあった。このことは，釧路砂質頁岩中には水が浸透しづらいクラックがあることを示しており，含水飽和に要する時間が長くなるものと考えられる。

5) 割裂して破断面を導入した試料の固有浸透率は，インタクトな試料の 1,000～10,000 倍ほどの値を示し，10^{-14}～10^{-15} m^2 のオーダーであった。ただし，破断面の含水状態の違いによる窒素ガスの固有浸透率の違いは明らかではなく，来待砂岩とは異なった結果が得られた。このことより，割裂した釧路砂質頁岩の透気性は特異な挙動を示す場合があると考えられる。

引用文献

1) Diamond, S. (1970): Pore size distribution in clays. Clays & Clay Minerals. 18, pp. 7-23.

2) Griffith, F. J., Joshi, R. C. (1989): Change in pore size distribution due to consolidation of clays. Geotechnique, 39, pp. 159-167.

3)児玉淳一他(2001):自然乾燥状態および湿潤状態にある登別溶結凝灰岩のクリープ変形とクリープ寿命，J.MMIJ，Vol.117，pp.718-724

4)森島宏(2009): 石油・天然ガス資源情報，http://oilgas-info.jogmec.go.jp/dicsearch.pl?freeword=%E3%82%B7%E3%82%A7%E3%83%BC%E3%83%AB%E3%82%AC%E3%82%B9&target=KEYEQ

5)高橋徹他(2015): 釧路コールマインにおける白亜系砕屑岩の浸透率の計測，資源・素材学会春季大会，1514，3/27，千葉