



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	超臨界 CO ₂ の圧入に伴う石炭の力学的挙動に関する基礎的研究
Author(s)	木山, 保
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	乙第7084号
Issue Date	2019-09-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.r7084
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/75857
Type	doctoral thesis
File Information	Tamotsu_Kiyama.pdf



超臨界 CO₂ の圧入に伴う石炭の力学的挙動
に関する基礎的研究

A Basic Study on Mechanical Behavior of Coal
during Supercritical CO₂ Injection

木山 保

Tamotsu KIYAMA

目次

1	緒言	1
1.1	研究の背景.....	1
1.2	夕張予備実験の概要.....	1
1.3	研究の目的と構成	3
2	応力拘束条件における石炭の液体/ 超臨界 CO ₂ および N ₂ 圧入に伴う挙動	5
2.1	試験方法	5
2.1.1	石炭試料.....	6
2.1.2	試験装置.....	6
2.1.3	センサーの配置.....	7
2.1.4	試験手順.....	8
2.2	試験結果	9
2.2.1	試験I.....	9
2.2.2	試験II.....	14
2.3	本章のまとめ	20
3	応力・ひずみ拘束条件下における超臨界 CO ₂ および N ₂ 注入に伴う石炭の浸透特性の実験的評価	22
3.1	試験方法	22
3.1.1	石炭試料.....	22
3.1.2	試験装置.....	23
3.1.3	供試体の被覆方法.....	24
3.1.4	試験手順.....	25
3.2	試験結果	26
3.2.1	過程I: 初期状態	26
3.2.2	過程II: ひずみ拘束/CO ₂ 注入	31
3.2.3	過程III: ひずみ拘束/N ₂ 注入.....	34
3.2.4	過程IV: 応力拘束/CO ₂ 注入.....	36
3.3	本章のまとめ	38
3.3.1	有効封圧, 周ひずみと V_p の関係.....	38
3.3.2	有効封圧, 浸透率と周ひずみの関係	40
3.3.3	ひずみ拘束条件における超臨界 CO ₂ の注入および N ₂ の注入に伴う石炭の挙動.....	41
3.3.4	応力拘束条件における超臨界 CO ₂ の注入に伴う石炭の挙動.....	42
3.3.5	夕張予備実験で観察された圧入量の変化.....	42

4	石炭の CO ₂ 吸・脱着に伴う膨潤挙動の温度依存特性	43
4.1	石炭試料と試験方法.....	43
4.2	試験I:応力拘束条件における温度変化に伴う挙動.....	44
4.3	試験II:ひずみ拘束条件における温度変化に伴う挙動	51
4.4	本章のまとめ	59
4.4.1	ひずみ拘束条件における温度変化に対する封圧および I_p の応答	59
4.4.2	間隙流体が CO ₂ の石炭の体積弾性率	63
5	超臨界 CO ₂ および N ₂ 圧入に伴う膨潤と浸透率変化に関する考察	63
5.1	石炭の膨潤挙動における拘束条件の影響.....	63
5.2	CO ₂ 圧入による膨潤挙動を厚肉円筒の焼き嵌めに模擬した一考察.....	64
5.3	石炭の膨潤挙動における温度条件の影響.....	66
5.4	膨潤に伴う浸透率低下を改善する一提案	67
6	結言	67
	謝辞	69
	引用文献	70

1 緒言

1.1 研究の背景

CCS (carbon dioxide capture and storage, 二酸化炭素地中貯蔵) の有力な手法の一つである CO₂-ECBM (CO₂-Enhanced Coaled Methane Recovery, CO₂ 圧入による炭層メタンガス増進回収) では、火力発電所などの大規模発生源で生成された CO₂ を分離・回収し、地下深部の石炭層に圧入する(White et al., 2005)。炭層固定では CO₂ 貯留と同時に CH₄ を回収できるが、CO₂ と CH₄ の置換特性や CO₂ 圧入による炭層の浸透性の低下メカニズムは十分に解明されていないのが現状である(Mazumber and Wolf, 2008; Gruszkiewics et al., 2009; Majewska et al., 2009)。CO₂ は CH₄ などと比較すると石炭に吸着されやすい性質を有し、CO₂ を吸着した石炭は膨潤する(Pan and Connell, 2007; Clarkson and Bustin, 1999)。さらに Larsen (2004)によると、石炭に CO₂ が溶解し、可塑化や融点低下をおこすとしている。また Pan and Connell (2007)は、石炭の CO₂ 吸着と膨潤特性は圧力に依存し、ピークを持つことを示した。

石炭の内部には、連続性が高い主炭理(face cleat)およびこれに直交する従炭理(but cleat)と呼ばれる割れ目系が存在し、石炭マトリクスはこれらに囲まれている(Mazumber and Wolf, 2008)。炭理は注入された流体の流路となる。一方、マトリクスは、注入される流体によって、吸着・膨潤および脱着・収縮を生じ、炭理は開口および閉塞すると考えられている。そのため、石炭試料に CO₂ などの流体を注入した時の浸透率はキーパラメーターの一つであり、その評価は非常に重要な研究課題である。炭理の開閉は、境界条件が応力拘束であるか、ひずみ拘束であるかによって大きく異なる。応力拘束では変形が許されるので、炭理が著しく閉塞されることはない。Mazumber and Wolf (2008)によると、平均間隙圧および有効応力を一定にした条件において、CH₄ で飽和されたコアに CO₂ を注入したが、浸透率の低下は観察されなかった。一方で、ひずみ拘束では石炭のマトリクスが膨潤しようとする、必然的に炭理を閉塞することになるが、浸透率等の物性を評価した研究は少ない。Palmer and Mansoori (1998)は浸透率と間隙率を指数の関係式でモデル化し、吸着・膨潤および浸透率変化の数値シミュレーションを示したが、このモデルには拘束条件の影響は表現されていない。

1.2 夕張予備実験の概要

北海道夕張市において日本初の CO₂-ECBM として、CO₂ 炭層固定の実証予備試験(以下、夕張予備実験と呼ぶ)が夕張シューパロ鉱山で、地下約 1000 m の炭層を対象に実施された。夕張予備実験は、経産省の補助事業として(株)環境総合テクノスが産学官と連携し、「二酸化炭素炭層固定化技術開発」における原位置試験として位置づけられる。地質構造、炭質、ガス包蔵量等の検討から石狩炭田南部の南大夕張区域をサイトに選定し、掘削深度が 900m を超える CO₂ 圧入井 IW-1 と観測井 PW-1 (生産井に相当)を夕張層下層に掘削した。PW-1 は、炭層貫通部の孔壁面積を大きく取ってガス産出効率を向上させるため、掘削深度 420m 以深は傾斜井とした。IW-1 と PW-1 の炭層貫通部の水平距離は 66.6m である。2004 年から本格的な CO₂ の圧入試験が開始さ

れ、2007 年までに計 884t の CO_2 を圧入した。原位置における CO_2 圧入試験に先行して、フォー
ルオフ試験結果から得られた浸透率等を用いて CO_2 の炭層内挙動に関するシミュレーションを実
施し、 CO_2 圧入量を 15.6~25.3t/day と事前予測した。しかし、圧入を開始すると実際の CO_2 圧入
量は予測の約 1/10 であった。この原因を IW-1 近傍の目詰まりの影響と考え、2005 年および 2006
年にはパーフォレーションの追加施工を、2007 年には水圧破砕を実施した。ここで言う目詰まりと
は、圧入孔井近傍の石炭が CO_2 を吸着して膨潤し、 CO_2 の流路となる炭理を閉鎖して浸透率を低
下させたものと考えた(Komaki, 2006)。なお、当初、粘性の低い超臨界 CO_2 の圧入を計画したが、
実際の地温が想定よりも低く、液体 CO_2 を圧入することになった。この後、加温設備・保温チュービ
ングを導入したが、超臨界 CO_2 の条件を満足するには至らなかった。そこで、 CO_2 吸着により膨潤
した炭層から CO_2 を脱着させて収縮させて浸透率を回復させることを目的として、2006 年に、炭層
への吸着量が少ない N_2 を圧入し、圧入性の改善を図る試験を実施した。 N_2 の圧入は 10 日間実
施された。Fig.1.1 に示すように、 N_2 圧入量は時間とともに増加し、9 日目(矢印①)には約 7t/day を
示した。 N_2 圧入終了から 5 日後、 CO_2 圧入を再開したところ、 CO_2 圧入量は N_2 圧入前の 2~3 倍
に増加した(矢印②)が、その後数日で、 N_2 圧入前の CO_2 圧入量に戻った(矢印③)。 N_2 圧入によ
る CO_2 圧入量改善効果は極めて短時間であることがわかった。

夕張予備実験では、以下のことが観測された。すなわち、(1)予想された圧入量(15.6~25.3t/day)
の 1/10 程度しか入らなかったこと、(2)圧入量は徐々に低下していったこと、(3)圧入性改善のため
に窒素ガス(N_2)を 10 日間圧入したところ、 N_2 の圧入量は時間とともに増加し、その後の CO_2 圧入
量が N_2 圧入前に比べ 2~3 倍に回復したこと、(4)一方で、数日で N_2 圧入前の CO_2 圧入量に戻
り、 N_2 圧入による CO_2 圧入量改善効果は極めて短時間であった(Fig. 1.1)。

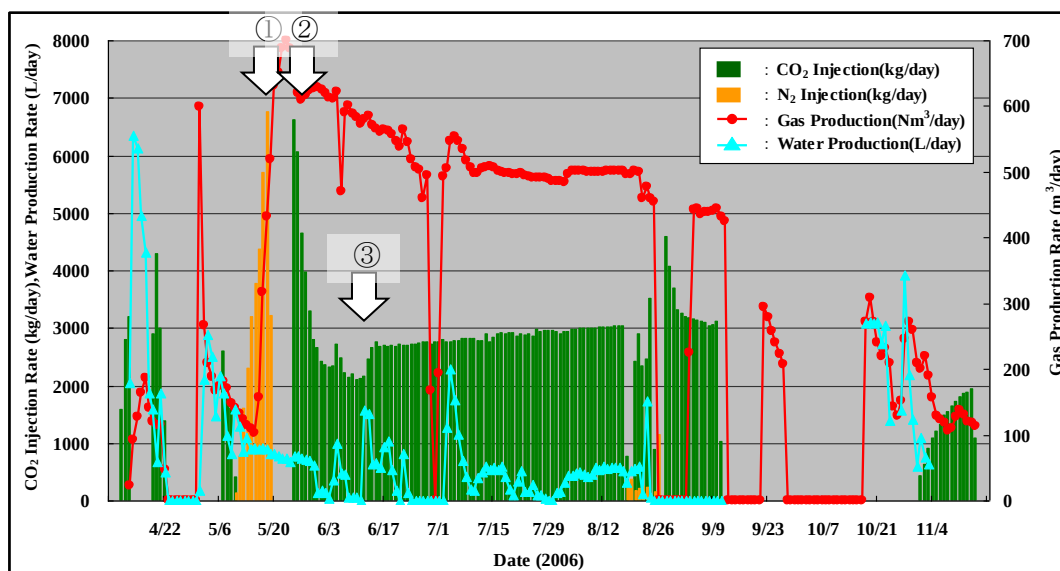


Fig.1.1 Result of CO_2 injection and CH_4 production in 2006.

1.3 研究の目的と構成

地下深部の炭層の間隙は、地層水で飽和されている。炭層に最初に CO_2 を圧入するとき、 CO_2 は炭層の間隙水を孔井近傍から遠方に押し出して、間隙を満たしながら浸透していく。地層水と CO_2 (液相または超臨界相) の粘性や圧縮率は大きく異なるので、仮に CO_2 による石炭の膨潤が起これないとしても、水を圧入した場合と液体/超臨界 CO_2 を圧入した場合の圧入特性は異なるものと考えられる (Skawinski, 1999)。

炭層に CO_2 が圧入され間隙を満たしながら浸透すると、 CO_2 は石炭マトリクスのマイクロポアに吸着され、膨潤しようとする。このとき、拘束条件が応力拘束条件では変形が許されるが、ひずみ拘束条件では変形が許されない。前者では著しい炭理の閉塞は起これないが、後者では著しい炭理の閉塞が起きて、浸透率の顕著な減少が起これる。

一般的に岩石三軸試験は封圧を一定とした条件下で実施することが多いが、これは応力拘束条件に相当する。封圧一定条件で石炭供試体に CO_2 を圧入したとき、マトリクスが膨潤しても変形は許されるので、炭理などのき裂が著しく閉塞されることはないので、浸透率の低下は顕著ではない。一方、一般的に圧密試験は剛性の高い鋼製円筒容器に供試体を入れて試験を実施するが、これはひずみ拘束条件に相当する。剛性の高い容器により変形は許されない。この条件で石炭供試体に CO_2 を圧入したとき、マトリクスは膨張しようとするが供試体全体としては変形できないので、マトリクスが膨張すると炭理は閉塞せざるを得ない。炭理が著しく閉塞することにより、浸透率は著しく減少する。

CO_2 を圧入する地下の炭層が、どのような拘束条件に置かれているかを検討する必要がある。一般に自然状態の地下岩盤は応力拘束条件に近いのではないだろうか。たとえば地下岩盤のある点 (地下 1000m の A 点) に作用する鉛直応力を考える。A 点に作用する鉛直応力が、上載荷重に起因する応力 (いわゆる被り圧) より高かったり低かったりするためには、A 点の周辺に高い剛性を有する岩盤が存在して、上載荷重に起因する鉛直応力を受け持って A 点に作用する鉛直応力を軽減したり、あるいは逆に鉛直応力を増加させたりしなければならない。岩盤の剛性はゼロではないので、このようなことは実際に起こりうるが、岩盤の剛性は限界があるので A 点の鉛直応力は被り圧から大きく外れることはない。すなわち応力拘束条件にある。次に、トンネルの周辺岩盤を考える。地下 1000m のトンネルの天頂 B 点では、空洞との境界にあるので鉛直応力はゼロである。B 点におけるトンネル断面の接線応力は、トンネル開削前の初期応力に比較すると大きくなっている。トンネルでは、いわゆるアーチ効果で接線方向の応力を競り持つことになり、空洞の安定を維持する。アーチ効果によりトンネル断面の接線方向の変形を拘束することで、遠方から作用する被り圧や水平応力がトンネル空洞を閉塞しようとするのを抑制している。すなわちトンネル接線方向に関しては、ひずみ拘束条件にある。

CO_2 -ECBM では、一般に炭層を貫通した孔井を中心点として放射状に CO_2 が圧入される。炭層の円柱形の領域に CO_2 が浸透し、この部分は膨潤しようとする。圧入される領域の十分遠方の境界が応力拘束であれば膨潤の際に直径方向の変形は許容されるが、円柱形の領域の接線方向の変形は拘束される。これはちょうどトンネルの接線方向で競り持つアーチ効果に類似している。こ

の領域の接線方向はひずみ拘束の傾向が支配的となるので、石炭マトリクスが CO_2 を吸着して膨潤すると炭理を閉塞し、結果的に孔井を中心とした半径方向の浸透率は減少し、圧入された CO_2 が放射方向に流動することを抑制する。

石炭の CO_2 吸着量と温度は負の相関を示す。すなわち、 CO_2 を吸着して膨潤していた石炭の温度を上げると、吸着可能な CO_2 の量が減少する。したがって温度上昇に伴い CO_2 は石炭から脱着し、収縮する可能性がある。一方、温度上昇に伴う熱膨張はこれとは逆トレンドとなるので、 CO_2 を吸着した石炭の温度変化に伴う挙動について十分に検討する必要がある。

本論では、以下のように試験内容を構成した。

2章では、変形が許される応力拘束条件におかれた石炭供試体に液体または超臨界 CO_2 を注入し、膨潤特性および浸透率の変化を観測した。

夕張予備実験から想定されるケースとして、

ケース①: 水で飽和された炭層に液体/超臨界 CO_2 を圧入

ケース②: 液体/超臨界 CO_2 でほぼ飽和された炭層に N_2 を圧入

ケース③: N_2 でほぼ飽和された炭層に液体/超臨界 CO_2 を再度圧入

の3つのケースに大別することができる。

夕張予備実験では、ひずみ拘束による炭理の閉塞が CO_2 圧入レート低下に大きく寄与した可能性があるが、本章では、まず応力拘束条件に限定し、原位置の炭層を構成する要素である石炭の挙動を把握することに目的を定め、2つのタイプの試験を進めた。

試験Ⅰは、含水飽和供試体に液体 CO_2 を圧入する試験とした。この試験では、夕張予備実験におけるケース①を想定し、初期状態で間隙が水で飽和されている石炭に、液体/超臨界 CO_2 を圧入する際の挙動を把握することとした。

試験Ⅱは、 N_2 飽和供試体に超臨界 CO_2 を圧入し、繰り返し N_2 および超臨界 CO_2 を圧入する試験とした。この試験では、夕張予備実験におけるケース②と③を想定しているが、初期状態を N_2 で飽和させており、夕張予備実験とは順序が逆になるが、 CO_2 圧入に伴う挙動を把握するためにはこの順序が望ましい。なお、順序が逆転することで大きな差異が生じるかどうかを検証するために、 N_2 再圧入と超臨界 CO_2 再圧入を実施した。

すべての試験を通して、ひずみ変化、弾性波速度(Xue and Ohsumi, 2004; Xue and Ohsumi, 2005b)および浸透率などを観測し、挙動の解釈を目指した。

3章では、夕張予備実験などで観察された CO_2 炭層固定における圧入量の大きな変化が拘束条件の違いに起因する可能性を考慮し、インタクトな石炭供試体を用いて N_2 および CO_2 を応力拘束およびひずみ拘束条件下で注入する室内試験を実施した。ただし、夕張予備実験では炭層の温度が予想より低く、液体 CO_2 の圧入となったが、本研究では今後期待されている超臨界 CO_2 によるECBMを想定して試験条件を設定した。注入流体や拘束条件の変更に伴う石炭試料の膨潤・収縮特性や応力、浸透率、弾性波速度(以下、 V_p と表す)などの変化を測定した。ひずみ拘束条件と応力拘束条件における超臨界 CO_2 注入において、注入特性が大きく異なることが明らかとなった。本研究の結果は、ECBMを推進する際の基礎的な知見を提供する。

4章では、温度条件について検討した。石炭の CO_2 吸着量と温度は負の相関を示す。すなわち、 CO_2 を吸着して膨潤していた石炭の温度を上げると、吸着可能な CO_2 の量が減少する。したがって温度上昇に伴い CO_2 は石炭から脱着し、収縮する可能性がある。一方、温度上昇に伴う熱膨張はこれとは逆トレンドとなるので、 CO_2 を吸着した石炭の温度変化に伴う挙動について十分に検討する必要がある。本論では、これに関する室内試験を2種類の拘束条件で実施した。もし温度を高くすることで膨潤が抑制されるのであれば、人為的に温度を上げて CO_2 を圧入することで孔井近傍の石炭の膨潤が軽減されて高い圧入量を維持できる可能性がある。孔井近傍から炭層奥部に浸入した CO_2 は炭層により冷却され、吸着量が増加し、固定される。

筆者は、石炭の CO_2 吸着に伴う膨潤による浸透率の低下を抑制する対策として、2点考えている。1点目は、温度の高い CO_2 を圧入する方法である。圧入井近傍の炭層で、粘性が低くマトリクスへの吸着が少ない高温の CO_2 は速やかに炭層奥部に移動し、そこで冷却され、吸着される。ここで膨潤するが、圧入井近傍の浸透率の低下を抑制できるメリットは大きい。2点目は、圧入井を複数とし、これを最大主応力方向に直交した方向に配列する方法である。これにより、アーチ効果によるひずみ拘束特性は軽減され、最大主応力方向への CO_2 の浸透は比較的容易となる。これらの方法を検討するために、本論では、拘束条件の影響や温度条件の影響を議論する。

2 応力拘束条件における石炭の液体/ 超臨界 CO_2 および N_2 圧入に伴う挙動

前章で、夕張予備実験において、 CO_2 の圧入を開始すると時間と共に流量が減少したこと、ここに N_2 を圧入すると流量が増加したこと、さらにここに CO_2 を圧入するとすぐに流量が減少したことを紹介した。これらの現象が、石炭の CO_2 および N_2 の吸・脱着に伴う膨潤・収縮に支配されている可能性を示唆した。そこで本章では、室内試験において、石炭供試体に CO_2 および N_2 を注入し、膨潤・収縮などの変形挙動や浸透率の変化、くわえて V_p の変化を計測し、夕張予備実験で経験した現象を再現し、定量的な評価の端緒となすことを目的とした。本論では、常温・常圧でどちらも気相を示す CO_2 および N_2 であるが、地下の炭層に圧入した際の挙動の違いに着目した。

Table 2.1 に、温度が 40°C 、圧力が 10MPa における水、 CO_2 および N_2 の主な物性を示す。この温度・圧力条件において CO_2 および N_2 は超臨界相となる。 CO_2 の密度は水の 60%、 N_2 は水の 10%である。一方、 CO_2 および N_2 の粘性は水より 1 オーダー低い値を示し、 CO_2 の粘性は N_2 の 2.5 倍である。これらの物性値の違いだけで夕張予備実験の現象を説明することは難しい。

Table 2.1 Physical properties of water, CO₂ and N₂ at 40°C, 10MPa.

	ρ kg/m ³	V_p m/s	β K ⁻¹	μ Pa×s	κ_T MPa ⁻¹
water	997	1550	3.9×10^{-4}	6.5×10^{-4}	4.3×10^{-4}
CO ₂	629	270	3.3×10^{-2}	4.8×10^{-5}	1.2×10^{-1}
N ₂	106	388	—	2.0×10^{-5}	—

ρ : density V_p :velocity β : isobaric expansion coef.
 μ : viscosity κ_T : isothermal compression coef.

2.1 試験方法

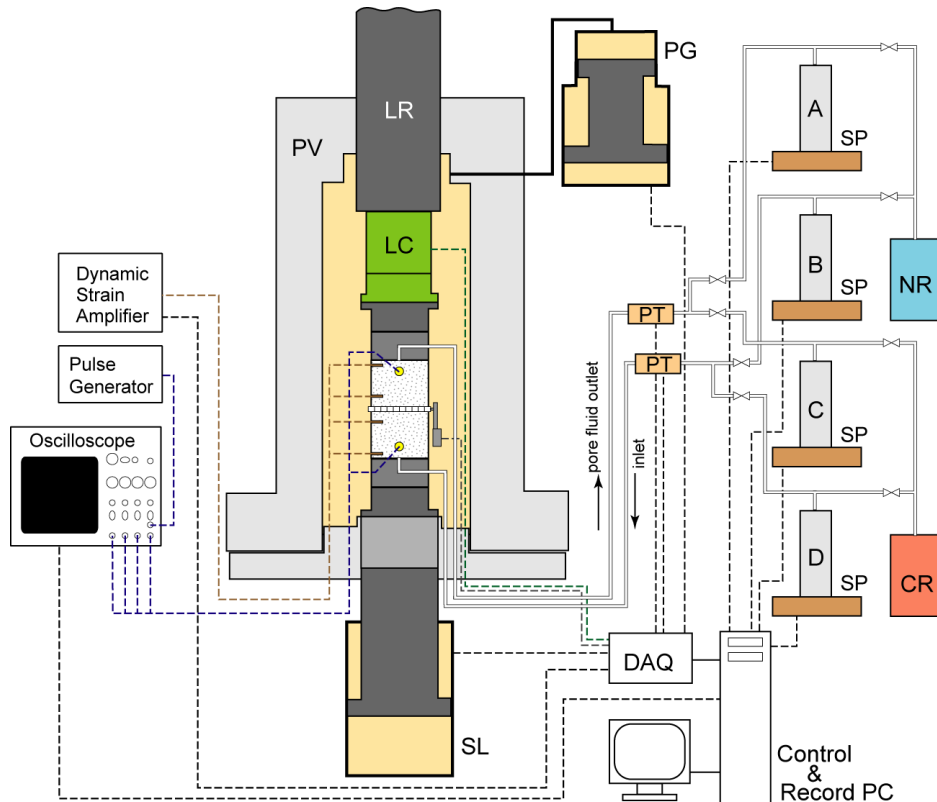
2.1.1 石炭試料

石炭試料は、北海道美唄市三美炭鉱朝駒露天坑において採取された美唄夾炭層 11 番層のブロックから、層理面に直交した方向を長軸として、直径 50mm、高さ 125mm の円柱供試体に整形した。主炭理 (face cleat) および従炭理 (but cleat) はそれぞれ層理面にほぼ直交するので、供試体の端面に主炭理および従炭理の断面が現れる。

2.1.2 試験装置

試験装置は、恒温室に設置された軟岩用岩石試験装置 (MTS 社製 810 型) を基本装置とし、これに間隙流体を制御する ISCO 社製のシリンジポンプ (500D 型) およびモニタリング機器を付加して構成される。岩石試験装置は、最大軸荷重が 500 kN、最大封圧が 50 MPa、温度制御範囲が -16~50°C で、圧力容器の中に供試体を入れ、封圧、間隙圧、軸応力および温度を設定した上で試験が行われる。間隙流体の制御には、ISCO 社製のシリンジポンプ (500D 型) を用いた。最大圧力が 25 MPa、シリンジ容量が 500 cm³ のシリンジポンプを 4 台導入し、そのうち 2 台は流体注入の制御に、残り 2 台は流体の排出に使用した。それぞれ 2 台を切り替えて用いることにより、基本的に連続した試験が可能となった。シリンジポンプの流量測定精度は 0.001cm³/min、圧力測定精度は 0.129MPa である。この圧力計では精度が十分ではないため、圧力測定精度が 0.02MPa の Druck 社製 PMP4015 圧力計 2 台を、供試体の両端面に接続された配管が圧力容器から出てきた部分に設置した。試験中、2 台の圧力計に同じ圧力がかかる場面が発生するので、出力が等しいかどうか確認し、有意な差が見られる場合は片方を基準とすることとした。ひずみゲージを用いたひずみ測定と圧電素子を用いた弾性波速度測定を実施した。ひずみゲージおよび圧電素子は、供試体に直接貼付される。外部 DAQ システム (ナショナルインスツルメンツ社製 PXI および LabVIEW) は、軟岩用岩石試験装置から送られるアナログ信号、シリンジポンプから RS232C を介

して送られる流量と圧力のデータ, 高精度圧力計から送られるアナログ信号, 動ひずみアンプから送られるアナログ信号, デジタルストレージオシロから GPIB を介して送られる弾性波波形のデジタルデータを一括して収集し, 保存する。Fig.2.1 に試験装置の構成を示す。



abbreviation; PV: pressure vessel, LR: loading rod, PG: pressure generator and intensifier, LC: load cell, AS: actuator and servovalve, DAQ: data acquisition system, PT: pressure transducer, SP: syringe pump, NR: nitrogen reservoir, CR: carbon dioxide reservoir

Fig.2.1 Schematic of testing systems. PV: pressure vessel, LR: loading rod, PG: pressure generator and intensifier, LC: load cell, DAQ: data acquisition system, PT: pressure transducer, SP: syringe pump, NR: nitrogen reservoir, CR: carbon dioxide reservoir.

2.1.3 センサーの配置

主炭理および従炭理は互いに直交し, どちらも供試体の軸方向に平行であるため, 炭理の違いによる変形特性の異方性が考えられる。このため, 供試体側面の周方向のひずみだけでなく軸方向のひずみも測定することにした。試験Ⅰでは, Fig.2.2(left)に示すように, 主炭理に直交する周方向に 4 枚, 従炭理に直交する周方向に 2 枚, 主炭理に直交する側面の軸方向に 2 枚のひずみゲージを貼付した。試験Ⅱでは, 周方向のひずみ変化に重点を置くため, Fig.2.2 (right)に示すように, 主炭理に直交する周方向に 4 枚, 従炭理に直交する周方向に 4 枚のひずみゲージを貼付した。弾性波測定用の圧電素子は, 共振周波数が 500kHz の厚み振動型のものを主炭理に直交する直径方向に計 4 個貼付した。 V_p の異方性は考えられたが, 測定システムの制約から, 主炭理に直

交する方向のみの測定とした。供試体の上下端に配置するエンドピースは、中央に直径 3mm の導水孔が設けられており、供試体とエンドピースの間には、200mesh のステンレス金網を挟み、間隙流体が端面全体に行き渡るように工夫している。供試体側面には、まず、粘性の低いシリコンシーラントを塗布し、この上に熱収縮機能のある PET フィルムを被せてヒータリングガンで収縮し、密着させた。さらに、この外周にシリコン熱収縮チューブを被せた。供試体の上下方向の中央部分には周変位計のチェーンが接するので、この部分を幅 10mm 程度残して、その上下にシリコンシーラントを 5mm 程度の厚みで塗布して補強した。

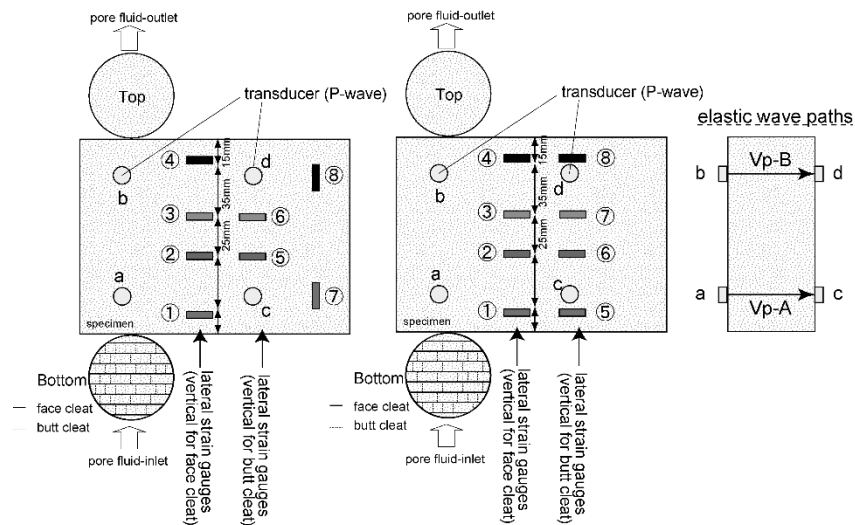


Fig.2.2 Layout of strain gauges and PZT for test I (left) and for test II (right).

2.1.4 試験手順

2.1.4.1 試験 I : 含水飽和/液体 CO₂ 試験

試験 I では、原位置の石炭層が地下に賦存している状態が地層水で飽和された状態であることを考慮し、初期状態を含水飽和状態とした。供試体には蒸留水を注入し、封圧 12MPa、間隙圧 10MPa を初期条件とする。ひずみ計測はこの時点を経点を原点とする。温度を 21℃とし、圧入側は液体 CO₂ を 11MPa で圧入し、排出側は水を 10MPa で制御し、CO₂ を圧入、水-CO₂ 置換を開始する。なお、CO₂ の臨界点は 31.0 °C , 7.37 MPa である(液体 CO₂ 圧入試験)。排出側で圧入された CO₂ のブレイクスルーが確認できたら、温度を 21℃から 40℃に上昇させ、供試体に含まれる CO₂ を超臨界状態へと相変化させた。封圧 12MPa、圧入側および排出側の間隙圧を 11MPa で、間隙流体が超臨界 CO₂ の状態で変化を観測する(超臨界 CO₂ 長期浸潤試験)。なお、設定する試験条件は、深度約 1000m を想定し、間隙圧は 10MPa、温度は 40℃とした(地温勾配 0.03℃/m、札幌の年平均気温約 10℃とした)。

2.1.4.2 試験 II : N₂ 飽和/超臨界 CO₂ 試験

試験 II では、有効封圧が 2MPa を越えない条件とし、試験開始時は N₂ ガスを間隙流体として圧

入する。その後、段階的に封圧・間隙圧を上昇させ、封圧 12MPa、間隙圧は 10MPa 条件下で、超臨界 CO₂ 圧入、N₂ の再圧入および超臨界 CO₂ の再圧入を行った。石炭供試体を試験機にセットした後、2MPa の封圧を負荷し、ひずみが安定した後、温度条件を 40℃に設定する。温度上昇による膨張ひずみが安定した後、圧入側から 0.1MPa で N₂ ガスの圧入を開始する。圧力伝播により排出側の圧力が 0.1MPa に達し、数時間にわたって、0.1MPa のまま保持する。圧入圧を 0.1MPa から 1MPa に上昇させる。圧力伝播により排出側の圧力が 1MPa に達し、数時間、圧入圧・排出圧を 1MPa のまま保持する。このように封圧上昇、間隙圧上昇、数時間の保持、というプロセスを繰り返しながら、封圧 11MPa、間隙圧 10MPa 条件まで上昇させる。この間、間隙圧 1, 3, 4, 8MPa 条件下において浸透率試験を実施した。この後、封圧のみを 1MPa 上昇させ、有効封圧を 2MPa とした(封圧 12MPa、間隙圧 10MPa)。封圧 12MPa の条件下で、定水位法にて N₂ の浸透率試験を実施した。この時の圧入圧は 10.2MPa、排出圧は 10.0MPa とした。間隙圧 10.0MPa で N₂ で飽和された供試体に、10.2MPa で CO₂ を圧入した。排出側ポンプは 10.0MPa で制御されている。約 4 時間後、排出側のポートに CO₂ がブレイクスルーしたのを確認し、排出側ポンプを止め間隙圧 10.2MPa で約 40 時間保持し、この間のひずみ、弾性波速度等を測定した。最後に、定水位法で CO₂ の浸透率試験を実施した。この時の圧入圧は 10.2MPa、排出圧は 10.0MPa とした。浸透率試験終了後は、圧入圧を 10.0MPa に戻した(第1回 CO₂ 圧入試験)。

間隙圧 10.0MPa で CO₂ でほぼ満たされた供試体に、N₂ を 10.2MPa で再圧入した。排出側ポンプは 10.0MPa で制御されている。同様にその後は排出側ポンプを止め、間隙圧 10.2MPa で約 40 時間保持し、この間のひずみ、弾性波速度等を測定した。最後に、定水位法にて N₂ の浸透率試験を実施した。この時の圧入圧は 10.2MPa、10.8MPa、排出圧は 10.0MPa である。浸透率試験終了後は、圧入圧を 10.0MPa に戻した(第2回 N₂ 圧入試験)。

間隙圧 10.0MPa で N₂ が満たされた状態で、CO₂ を 10.2MPa で再圧入した。以降、第 1 回 CO₂ 圧入試験と同様に、約 40 時間保持後、浸透率試験を実施し、浸透率試験終了後は、圧入圧を 10.0MPa に戻し試験を終了した(第2回 CO₂ 圧入試験)。

なお、第1回 CO₂ 圧入試験以降において、N₂ と CO₂ が間隙内で完全に置換しているかどうかは検討の余地を残すが、すべての浸透率試験を同じ試験条件で実施しているので、定性的な特徴は反映される。

2.2 試験結果

2.2.1 試験 I

2.2.1.1 液体 CO₂ 圧入試験における挙動

主炭理に直交する横ひずみゲージの変化を Fig.2.3 に示す。液体 CO₂ の圧入を開始すると、まず水と液体 CO₂ の切替えバルブから供試体端面までのチューブ内の水が圧入され、その後液体 CO₂ が圧入される。なお、間隙流体が水のときにトランジエントパルス法で測定した浸透率は 1.81×10^{-6} darcy であった。圧入側の端面から 15mm に貼付されたゲージ①は圧入開始から約 10 時間経過後に膨張し始めた。端面から 50mm のゲージ②が約 15 時間経過後に、端面から 75mm のゲ

ージ③が約 20 時間経過後に、端面から 110mm のゲージ④が約 25 時間経過後に膨張し始めた。圧入開始時を原点とする膨張ひずみは、最大約 4500μ ストレインである。これらの膨張は、液体 CO_2 が圧入側から排出側に向かって浸透し、液体 CO_2 が間隙水と置換し、石炭に CO_2 が吸着して膨潤したものと考えられる(Mazumber and Wolf, 2008; Xue and Ohsumi, 2005a)。従炭理に直交する横ひずみゲージの変化を Fig.2.4 に示す。圧入側の端面から 50mm に貼付されたゲージ⑤および端面から 75mm のゲージ⑥は圧入開始から約 15 時間経過後のほぼ同時期に著しい膨張を示した。圧入開始時を原点とする膨張ひずみは、最大約 4500μ ストレインである(Reucroft and Patel, 1986)。主炭理に直交する軸ひずみゲージの変化を Fig.2.5 に示す。圧入側の端面から 25mm に貼付されたゲージ⑦および端面から 100mm のゲージ⑧は圧入開始から約 10 時間経過後に、ほぼ同時期に膨張し始めた。圧入開始時を原点とする膨張ひずみは、最大約 3000μ ストレインである。主炭理に直交する側面には、局所的に透過性の高い部分が存在する可能性がある。

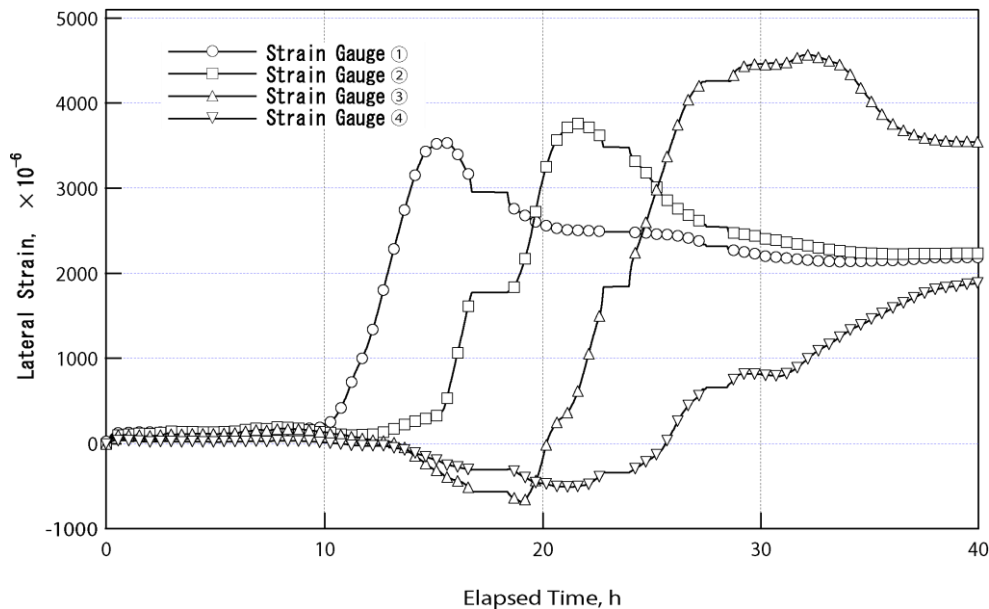


Fig.2.3 Lateral strain change at perpendicular to the face cleat in the CO_2 injection.

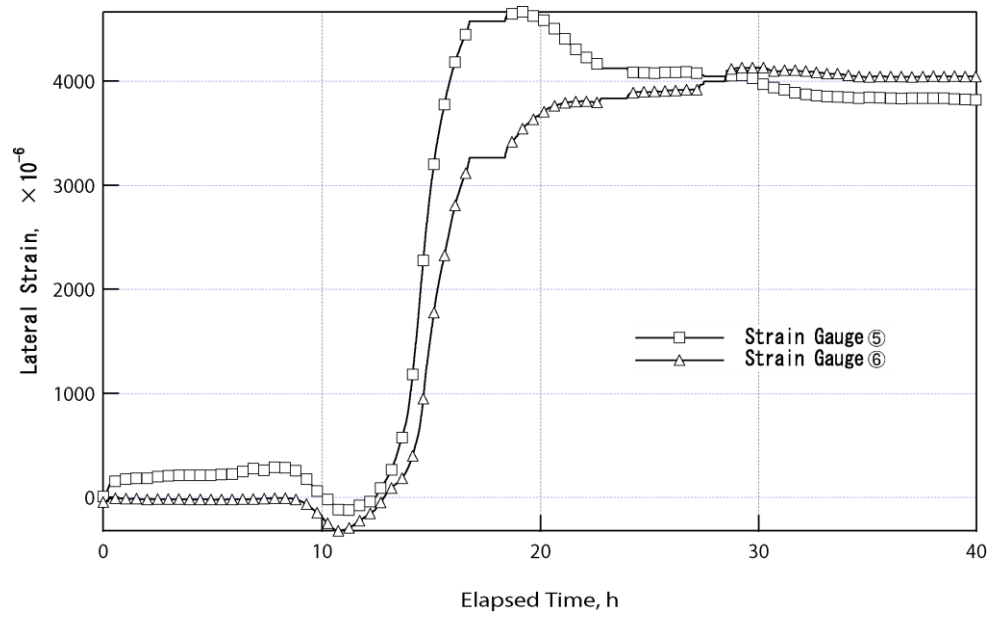


Fig.2.4 Lateral strain change at perpendicular to the but cleat in the CO₂ injection.

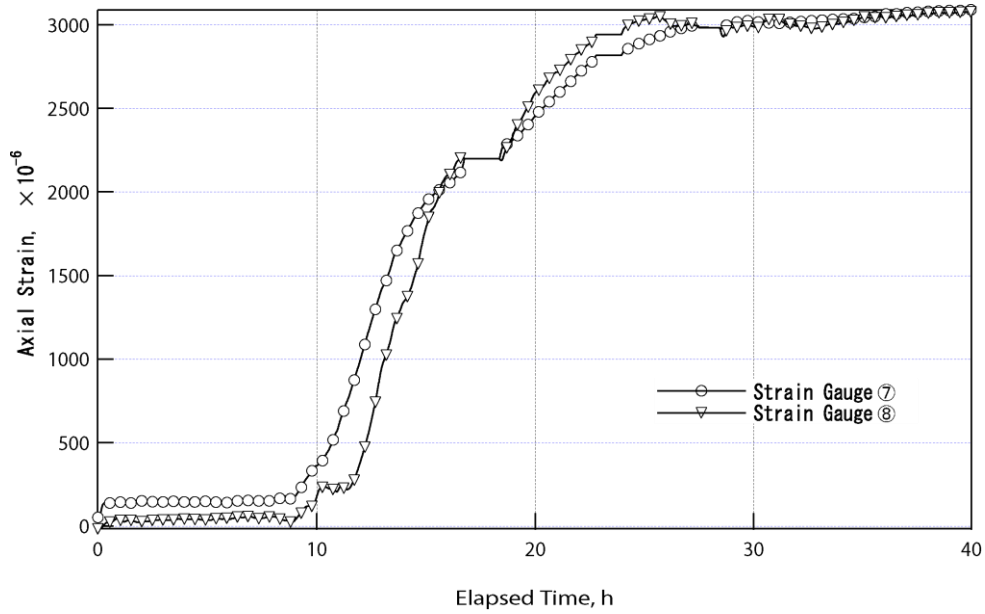


Fig.2.5 Axial strain change at perpendicular to the but cleat in the CO₂ injection.

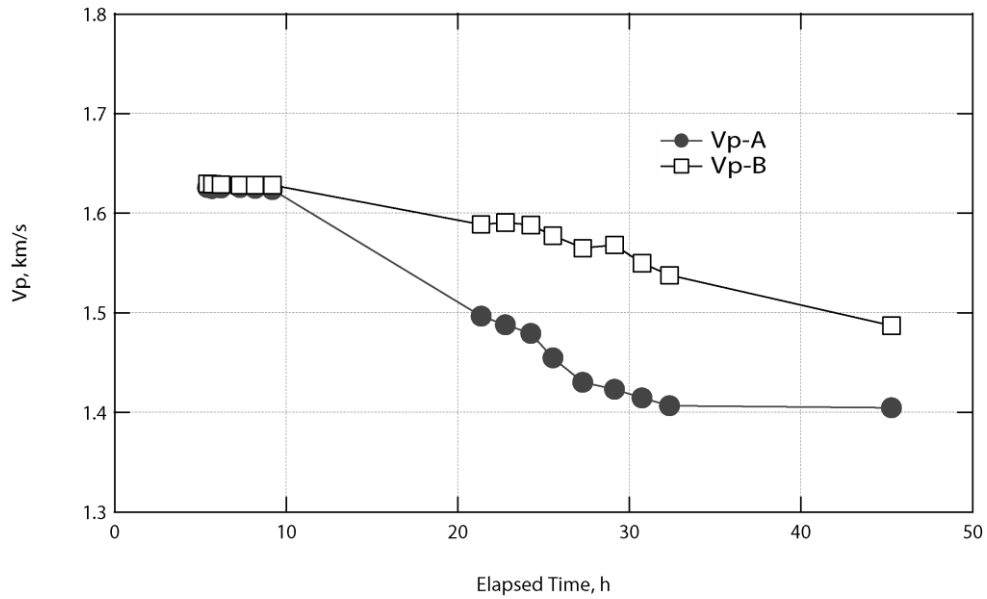


Fig.2.6 Change of V_p across the face cleat in the CO₂ injection.

Fig.2.6 に、圧入側の端面から 25mm および 100mm における主炭理に直交する弾性波速度 V_p -A および V_p -B の変化を示す。液体 CO₂ の圧入を開始すると、 V_p -A は比較的早い段階で 1.6km/s から 1.4km/s まで大幅に減少し、その後の変化は小さい。一方、 V_p -B は圧入前には V_p -A と同じ 1.6km/s を示し、変化が始まる時期は V_p -A と変わらないが、速度の減少傾向は長期にわたり続いた。圧入開始から約 45 時間経過後において、 V_p -B は V_p -A より 5% 程度高い。圧入側の

V_p -A の径路には、短時間で液体 CO_2 が到達し、かつ水との置換も速やかに完了し、その後の変化は少ない。一方、排出側の V_p -B の径路には、少量の液体 CO_2 は比較的短時間で到達し、速度の減少が現れ始めるものの、多くの液体 CO_2 は到達に時間がかかり、速度の減少は継続的である。これらの挙動はひずみの変化と調和的である(Xue and Ohsumi, 2004; Xue and Ohsumi, 2005b)。

間隙流体が液体 CO_2 に置換された際の定水位法で測定された浸透率は $1 \times 10^{-5} \sim 8 \times 10^{-5} \text{darcy}$ で、差圧が 0.2MPa と超えると急増した。

2.2.1.2 超臨界 CO_2 長期浸潤試験における挙動

CO_2 の超臨界条件に設定された後の主炭理に直交する横ひずみゲージの経時変化を Fig.2.7 に示す。約 70 時間の経過時間において、ひずみゲージの変化は最大約 $700 \mu\text{ストrein}$ で、液体 CO_2 圧入時の膨張に比較すると小さく、おおむね緩やかなひずみの減少傾向(収縮)が見られる。従炭理に直交する横ひずみおよび主炭理に直交する軸ひずみも含め、超臨界 CO_2 長期浸潤試験におけるひずみ変化は液体 CO_2 圧入試験におけるひずみ変化に比較すると小さい。

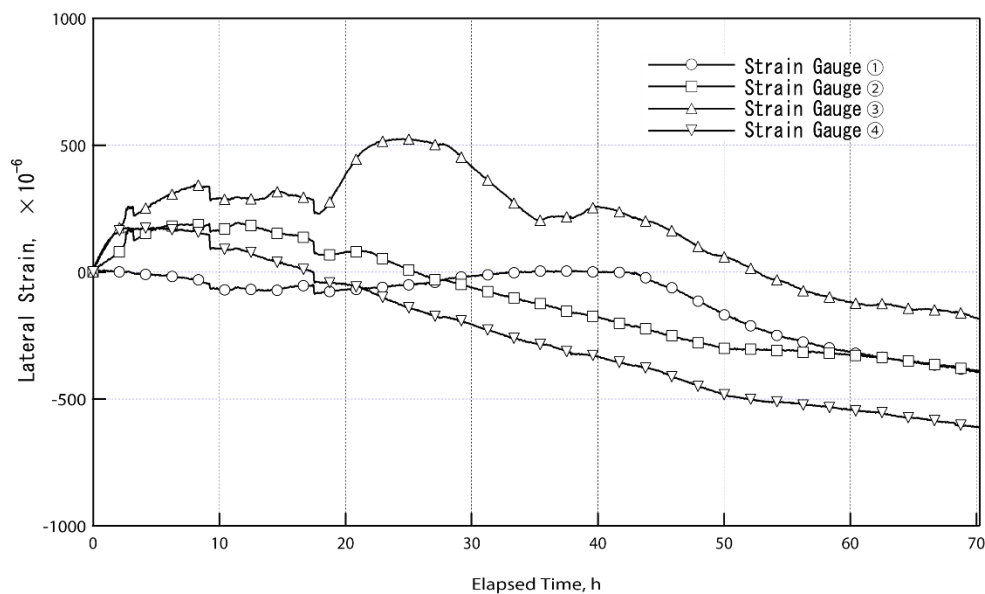


Fig.2.7 Lateral strain change at perpendicular to the face cleat contained supercritical CO_2 in long term observation.

Fig.2.8 に、 V_p -A および V_p -B の変化を示す。間隙流体が超臨界 CO_2 となった状態で、圧入側の端面から 25mm の V_p -A は約 1.1km/s で、時間に伴いわずかな増加を示したのに対し、端面から 100mm の V_p -B は早い段階で 1.3km/s から 1.5km/s まで増加し、その後の変化はわずかであった。

間隙流体の液体 CO_2 が昇温により超臨界 CO_2 に相変化した際の定水位法により測定された浸透率は $1 \times 10^{-5} \sim 3 \times 10^{-4} \text{darcy}$ であった。

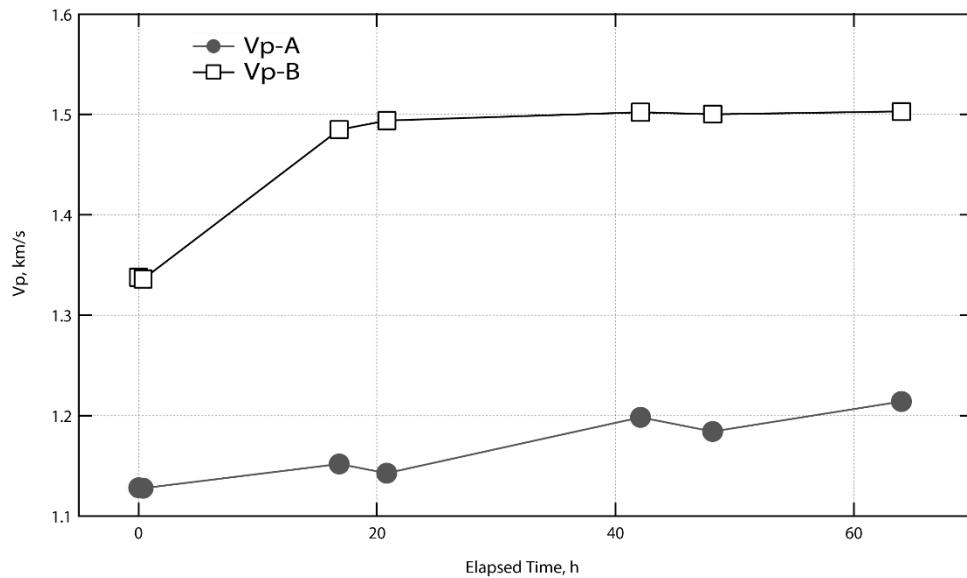


Fig.2.8 Change of V_p across the face cleat contained supercritical CO_2 in long term observation.

2.2.2 試験Ⅱ

2.2.2.1 第1回 CO_2 圧入試験における挙動

主炭理に直交する横ひずみゲージの変化を Fig.2.9 に、従炭理に直交する横ひずみゲージの変化を Fig.2.10 に示す。超臨界 CO_2 の圧入を開始すると、約 30 分の間に圧入側のひずみゲージから順に 5000～8000 μ ストレインの膨張が発生した。超臨界 CO_2 圧入の前に、 N_2 を間隙流体として同様の応力条件を与えている。従ってここで発生した膨張は、間隙圧の伝播などによるものではなく、石炭に CO_2 が吸着して膨潤したものと考えられる(Xue and Ohsumi, 2005a; Reucroft and Patel, 1986; Reucroft and Sethuraman, 1987)。圧入開始から約 70 時間観察したが、膨張が収束した後は特筆すべき変化は見られない。第1回 CO_2 圧入試験では、ひずみ変化が終息した約 30 分以降も超臨界 CO_2 の圧入を継続し、約 5 時間で 977 cm^3 の超臨界 CO_2 を 10.2MPa で圧入し、排出側から 1013 cm^3 の流体が 10.0MPa で排出された。供試体の体積は 245 cm^3 で、その約 4 倍の超臨界 CO_2 を圧入した。変形の異方性を確認するために主炭理および従炭理に直交する方向にひずみゲージを貼付したが、以降の試験においても顕著な異方性は認められなかったので、主炭理に直交するひずみゲージの結果のみを示す。

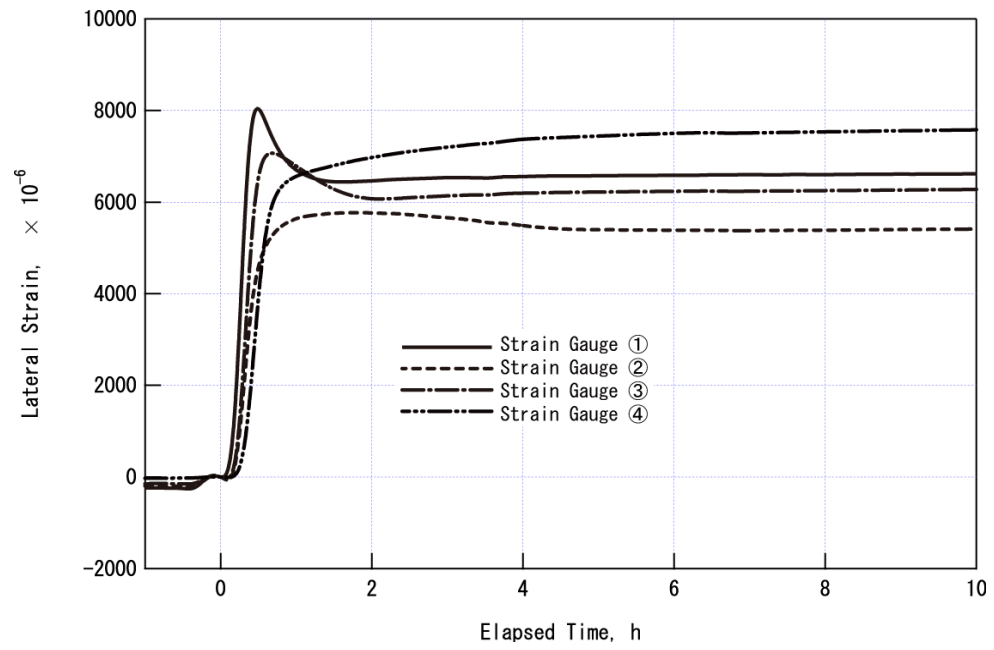


Fig.2.9 Lateral strain change at perpendicular to the face cleat in the 1st CO₂ injection.

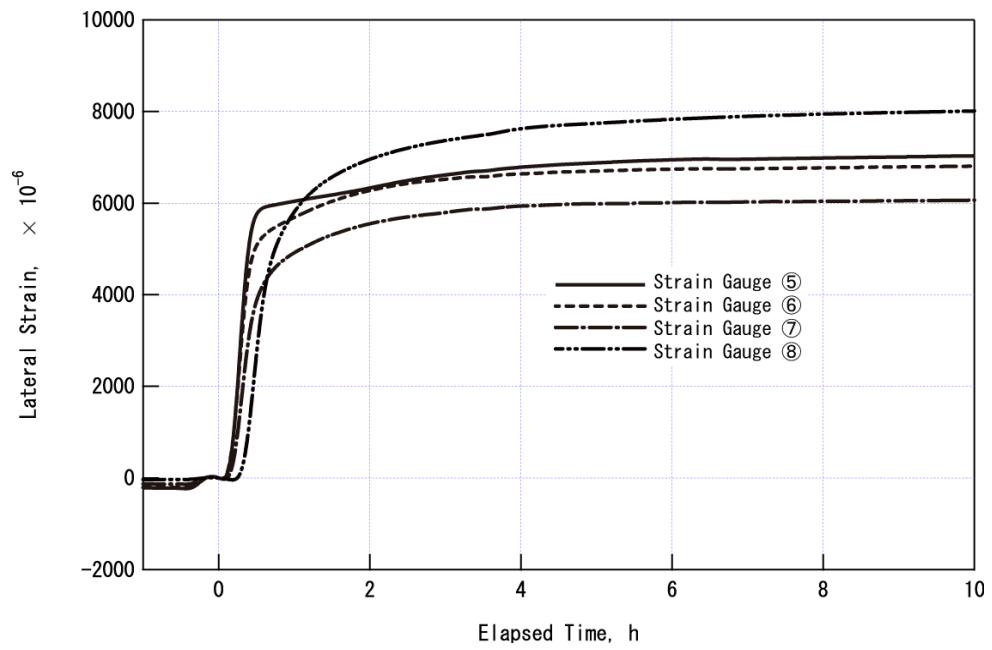


Fig.2.10 Lateral strain change at perpendicular to the but cleat in the 1st CO₂ injection.

試験Ⅱ全体の弾性波速度測定結果を Fig.2.11 に示す。 V_p は、有効応力および間隙流体の密度に敏感なので、図には封圧、間隙圧および有効応力の変化を併記する。第1回 CO_2 圧入試験の前段階で、有効応力を1MPaに維持しながら N_2 を10MPaまで増加させたところ、 V_p は1.48km/s から1.56km/s まで0.08km/s 増加した。ここで有効応力を2MPaとして第1回 CO_2 圧入試験を実施したところ、 V_p は1.59km/s から1.61km/s まで0.02km/s 増加した。試験Ⅱ全体の浸透率測定結果を Fig.2.12 に示す。図中、G はガスを、SC は超臨界を表す。なお、3回の圧入試験において、間隙容積に対して十分大きい容量の流体を圧入したことにより、既存の間隙流体は圧入された流体にはほぼ置換されたと判断し、定水位法による浸透率の評価を行った。第1回 CO_2 圧入試験の前段階で有効応力を1MPaに維持しながら N_2 を10MPaまで増加させたが、ここで $5.6 \times 10^{-4} \sim 8.5 \times 10^{-4}$ darcyを示した浸透率は、第1回 CO_2 圧入試験で超臨界 CO_2 を圧入すると $2.2 \times 10^{-4} \sim 2.4 \times 10^{-4}$ darcyに減少した。

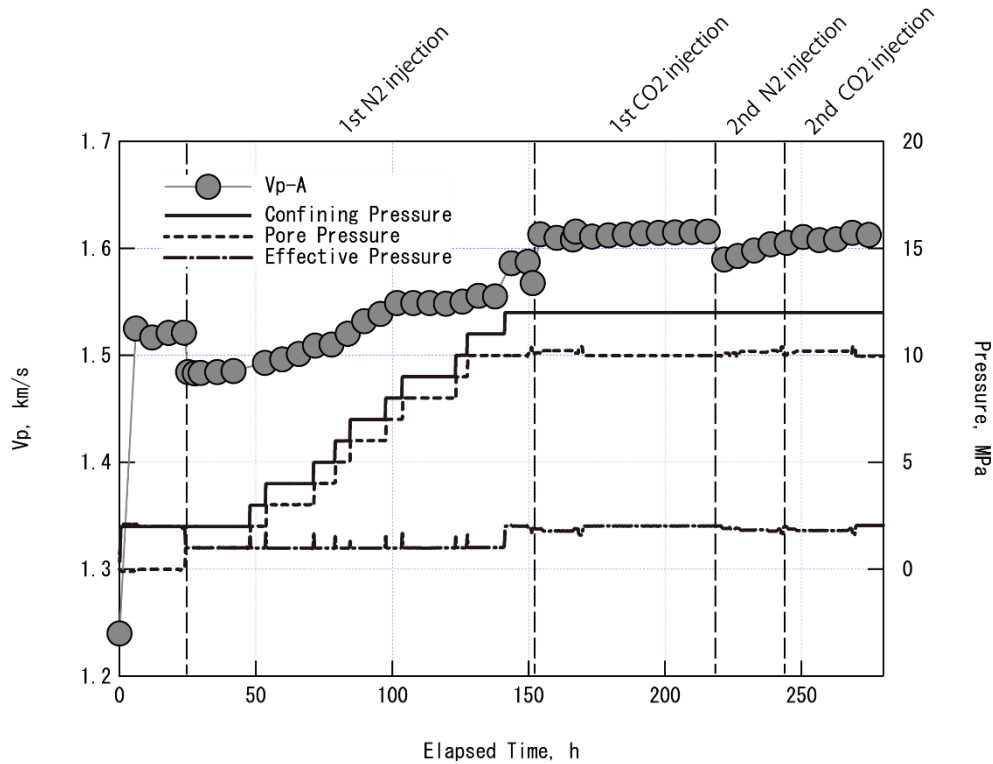


Fig.2.11 Change of V_p -A across the face cleat in the test II.

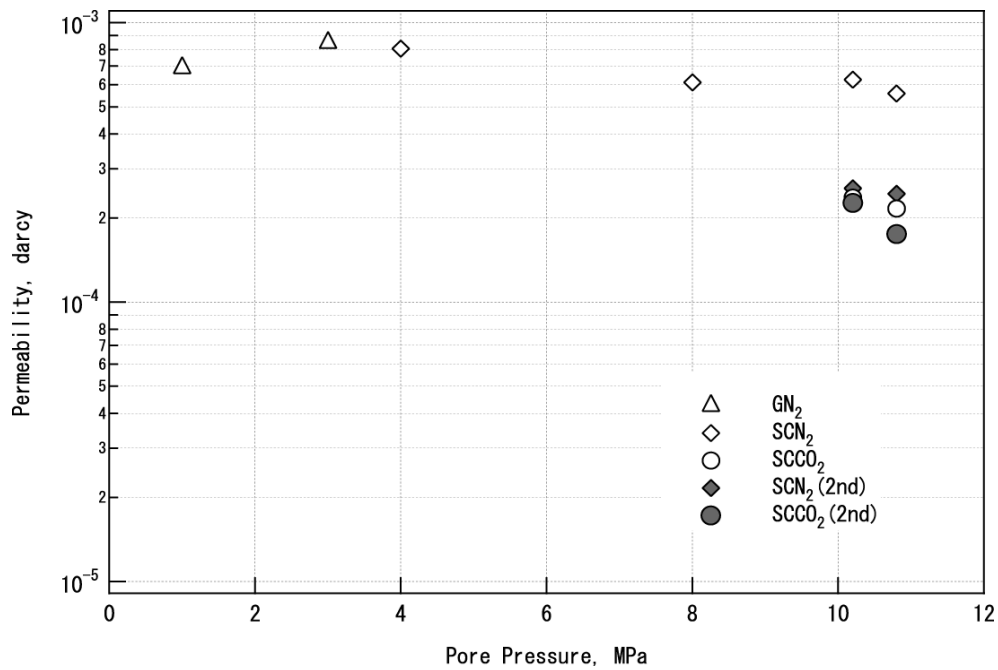


Fig.2.12 Relation between pore pressure and permeability.

2.2.2.2 第2回 N₂ 圧入試験における挙動

主炭理に直交する横ひずみゲージの変化を Fig.2.13 に示す。第 2 回の N₂ 圧入を開始すると、圧入側のひずみゲージから順に 5000~7500 μ ストレインの収縮を示した。第 1 回 CO₂ 圧入試験では約 30 分間で著しい膨張が終息したのに対し、ここでは約 10 時間でほぼ同等の収縮を示し、その後も収縮が継続しており、変形速度は明らかに緩慢である。第 2 回 N₂ 圧入試験では、約 7 時間で 1057cm³ の N₂ を 10.2MPa で圧入し、排出側から 1031cm³ の流体が 10.0MPa で排出された。第 2 回 N₂ 圧入試験において、 I_p は 1.61km/s から 1.59km/s まで 0.02km/s 減少し、その後、時間とともに 1.61km/s まで回復した。

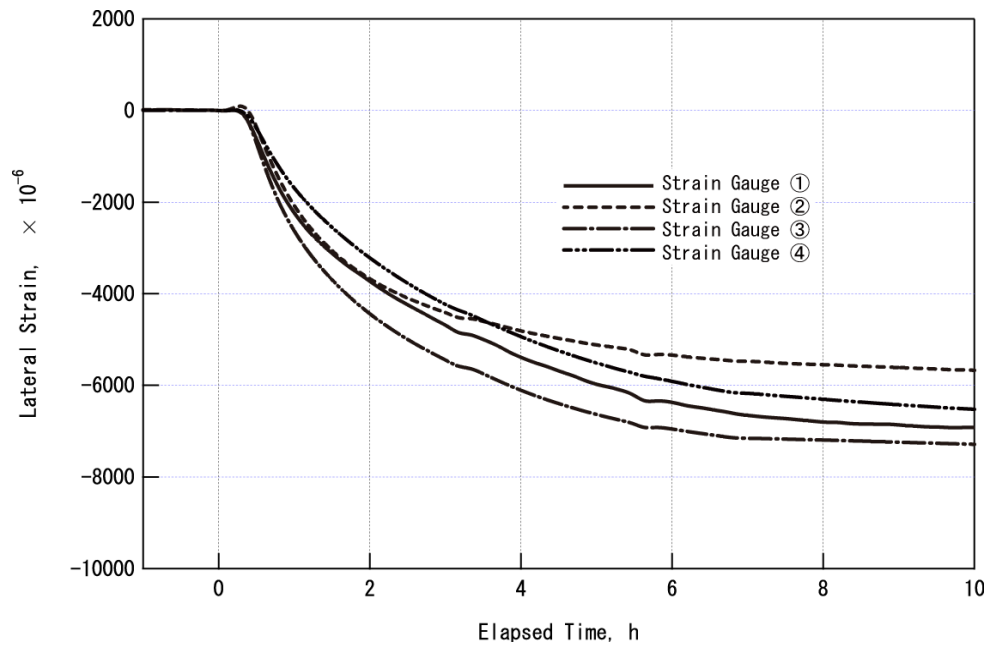


Fig.2.13 Lateral strain change at perpendicular to the face cleat in the 2nd N₂ injection.

第 2 回 N₂ 圧入試験において、浸透率は $2.4 \times 10^{-4} \sim 2.6 \times 10^{-4}$ darcy を示し、大きな変化は見られなかった(Mazumber and Wolf, 2008; Mavko and Hoeksema, 1994)。

2.2.2.3 第 2 回 CO₂ 圧入試験における挙動

主炭理に直交する横ひずみゲージの変化を Fig.2.14 に示す。第 2 回の CO₂ 圧入を開始すると、圧入側のひずみゲージから順に膨張し、それぞれのひずみゲージは第 2 回 N₂ 圧入試験直前のレベルに戻った。変形速度は、第 1 回 CO₂ 圧入試験と同等である。第 2 回 CO₂ 圧入試験では、約 3 時間で 152cm³ の CO₂ を 10.2MPa で圧入し、排出側から 180cm³ の流体が 10.0MPa で排出された。

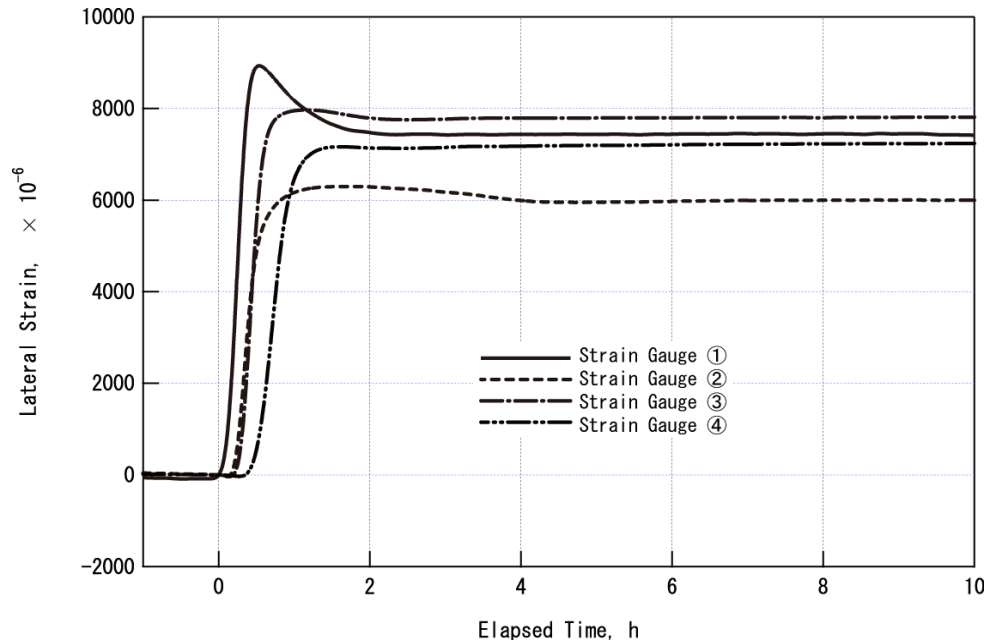


Fig.2.14 Lateral strain change at perpendicular to the face cleat in the 2nd CO₂ injection.

第2回 CO₂ 圧入試験において、 V_p は 1.61km/s を示したままで、ほとんど変化しなかった。第2回 CO₂ 圧入試験において、浸透率は $1.8 \times 10^{-4} \sim 2.3 \times 10^{-4}$ darcy を示し、大きな変化は見られなかった。

2.3 本章のまとめ

水および N₂ で飽和した北海道美唄産石炭の供試体に、液体/超臨界 CO₂ および N₂ を圧入し、主としてひずみ、 V_p および浸透率に着目して、その挙動を観察した。

試験 I において、水飽和状態の石炭に液体/超臨界 CO₂ を圧入すると、圧入側から排出側に向かって水と液体/超臨界 CO₂ の置換が進行し、石炭と液体/超臨界 CO₂ の反応により、順次、膨張が発生する。試験 I の水飽和状態では試験 II の N₂ 飽和状態に比較して、液体/超臨界 CO₂ の進行が緩慢である。しかし、試験 I のひずみの変化のうち、主炭理に直交するひずみゲージは圧入側と排出側でほぼ同時に反応する場合があります、炭理の性状はさまざま、局所的にきわめて浸透率の高い領域があること、主炭理は連続性が高いことを示唆する。これは、 V_p の測定において、排出側の V_p -B の減少が圧入開始から比較的短い時間から発生していることから推察される。すなわち、一部の液体 CO₂ は比較的短時間で排出側に到達するが、その他に供試体内部を徐々に進行する液体 CO₂ が V_p -B のパスに到達するに従い、 V_p が減少すると考えられる。

石炭のモデルは、マイクロポアを有するブロック状のマトリクスが、平板き裂の形状を有する炭理に囲まれた構造でしばしば表現される。マトリクスのマイクロポアが閉鎖していない連結した小さい開口半径 R の孔隙と考える。炭理は、一般的に平板き裂の形状を示すので、もし、き裂開口幅がマイクロポアの直径と同程度であったとしても、炭理の浸透率はマトリクスより大きいと考えられる。

圧入側から排出側に向かって炭理を流れる液体 CO_2 の速度は大きい、浸透率が低いマトリクスを流れる液体 CO_2 の速度は小さい。すなわち、流れの方向に連続したマトリクスでは、圧入側から排出側に向かって、ゆっくり液体 CO_2 が浸透するので、これを反映したひずみの変化もゆっくりと進行する。一方、炭理に沿った部分では、すみやかに液体 CO_2 が流れるため、ひずみなどの変化も速い。

V_p の挙動は、液体 CO_2 がブレイクスルーした後も、供試体内部とくに排出側で水が残留していることを示唆した (Xue, 2005; Mavco and Mukerji, 1998; Walker et al., 1988)。水飽和状態の石炭に液体/超臨界 CO_2 を圧入した際の挙動をキャピラリー圧の考え方で解釈してみる。石炭は、主炭理、従炭理および層理面でブロック状に区切られているが、水飽和している個々のブロック状のマトリクスの圧入側と排出側の差圧が、水と液体/超臨界 CO_2 のキャピラリー圧を超えると、液体/超臨界 CO_2 がマトリクス内部を流れるが、これ以下では流れないと考えられる。浸透率測定において、圧入側と排出側の差圧が 0.2MPa で低い浸透率を示したのは、この条件では CO_2 は炭理のみを流動し、マトリクス内部の流動が生じていないと考えると調和的である。

試験Ⅱにおいて、 N_2 飽和状態の石炭に超臨界 CO_2 を圧入すると、圧入側から排出側に向かって N_2 と超臨界 CO_2 の置換が進行し、石炭と超臨界 CO_2 の反応により、順次、膨張が発生する。しかし、その反応時間は試験Ⅰに比較するときわめて短い。これに対し、 N_2 の圧入では、収縮するのに要する時間が長く、必ずしも圧入側から排出側に順序良く反応が進行していない。Gruszkiewics (2009) や Walker et al. (1988) は、 CH_4 やメタノールと CO_2 の吸着・脱着速度の違いについて報告している。 N_2 の主たる流路が炭理で、 CO_2 がすでに浸入しているマトリクス内部の孔隙に N_2 が浸透しづらいと考えると、これらの現象に調和的である。一旦、石炭のマトリクスと反応した CO_2 は、その後 N_2 を圧入しても容易には排出されない。また、マトリクスの浸透率もこれに呼応して回復しない。2 回目の超臨界 CO_2 の圧入において、ひずみ変化の進行が 1 回目の圧入に比較して時間を要することもこれを支持する。

浸透率の変化 (Fig.2.12) から、一旦 CO_2 が圧入されると、その後、 N_2 を圧入しても浸透率がそれほど回復せず、マトリクスと CO_2 の反応が強いことを支持する。

試験Ⅱでは密度の差が小さい N_2 と超臨界 CO_2 の繰り返し圧入により、膨張および収縮挙動を示すが、応力拘束条件で変形が許されるので、 V_p の変化は比較的小さい。それでも、第 1 回 CO_2 圧入試験で V_p は増加した。また、第 2 回 N_2 圧入試験で V_p は一旦減少し、その後回復した。 V_p は、径路に存在する平板き裂の開口や閉口に敏感であり、超臨界 CO_2 の圧入に伴い、変形は許されるものの局所的に炭理が閉口する領域が発生し、 V_p は増加する。一方、 N_2 の再圧入に対して、圧入開始から短い時間では、 N_2 の局所的・選択的流れにより、収縮が不均一に発生し、これにより炭理が開口する領域が生まれ、 V_p は減少する。その後、収縮が均一に広がると炭理は閉口し、 V_p は回復する。

試験Ⅱにおける超臨界 CO_2 圧入およびそれ以降の試験過程における浸透率は、おおむね $1 \times 10^{-4}\text{darcy}$ オーダーで、ここで検討したモデルに調和的である。これは、水で飽和した石炭でも、液体/超臨界 CO_2 の圧入を継続し、マトリクス内部の孔隙から水が排出されるにつれて、浸透率が増

加する可能性があることを示唆する。

本章では、試験条件として応力拘束を採用したが、原位置の孔井周辺では、ひずみ拘束の要素が加味されると想定される。この場合、石炭が膨張しようとする、局所的に応力が増加し、ここでは浸透率が低下すると考えられる。そこで次章では、ひずみ拘束条件の試験を実施し、拘束条件の違いが液体/超臨界 CO₂ 圧入による石炭の挙動に及ぼす影響を明らかにしていく。

3 応力・ひずみ拘束条件下における超臨界 CO₂ および N₂ 注入に伴う石炭の浸透特性の実験的評価

前章で、室内試験において、夕張予備実験で経験した現象を再現し、定量的な評価の端緒となすことを目指した。変形挙動については大きな膨潤・収縮変形が観察されたが、浸透率の変化はわずかで、夕張予備実験の現象を再現できたとは言いがたい。そこで本章では、室内試験の条件を再考し、2 種類の異なる条件で試験を実施して、夕張予備実験の現象を説明するための基礎的な知見となすことを目指した。

3.1 試験方法

3.1.1 石炭試料

夕張予備実験では、室内試験に使用可能な原位置の石炭試料は採取できなかった。また、夕張地域には夕張層の露頭が何箇所かあるが、風化が著しい。さらに 2 章で使用した美唄夾炭層のコアは使い切り、再入手はできなかった。そこで、本研究ではオーストラリア、クイーンズランド州ボーエン炭田の稼行中炭鉱から産出した石炭を用いた。ボーエン炭の工業分析結果を、夕張予備実験で採取された石炭の結果とともに Table.3.1 に示す。ボーエン炭田の地質年代は後期ペルム紀で、夕張炭田の古第三紀と異なるが、工業分析結果のうち、灰分、揮発分、固定炭素に関してはきわめて近い値を示す。

Table 3.1 Industrial analysis of Bowen coal and Yubari coal.

	moisture, %	ash, %	volatilematter, %	fixed carbon, %
Bowen	9.1	4.2	35.7	51.0
Yubari	2.1	5.5	37.7	54.7

約 1×1×1 m の石炭ブロックサンプルから、直径 50 mm、高さ 125 mm の供試体を整形し、試験に供した。石炭ブロックのほぼ層理面に一致する面の写真を Fig.3.1 に示す。同図中、左上から右下の方向に連続性が高いき裂が卓越している。また、これに直交する方向のき裂は連続性が低い。前者を主炭理、後者を従炭理と判断した。供試体の長軸は層理面に直交方向としたので、主炭理および従炭理は長軸に平行となる。



Fig.3.1 Picture of the bedding plane of the coal block.

石炭供試体の弾性波速度 V_p は、大気圧下ではき裂が緩んでいて観測が困難であるが、有効封圧をかけることにより波形が観測され、 V_p を評価することが可能となる。たとえば、間隙流体が N_2 で封圧 12MPa、間隙圧 10MPa(有効封圧 2MPa)における V_p は、同一ブロックから整形された複数の供試体で 1.8~1.9km/s の範囲に入り、バラつきは小さい。地下深部の応力環境を再現して室内試験を実施することにより、単一供試体の試験においても有効な情報が提供されると判断した。

3.1.2 試験装置

試験装置は、基本的に 2 章と同じなので 2.1.2 を参照されたいが、試験の制御法などで異なる点があるので触れる。応力拘束条件とひずみ拘束条件の 2 種類の拘束条件のうち、2 章でも適用した応力拘束条件は圧力容器内部の封圧を一定に制御した。一方、本章で新たに適用したひずみ拘束条件は、円柱供試体の側面に取り付けた周変位計の出力を封圧発生装置のサーボ制御に帰還し、供試体の周長が変化しないように封圧をサーボ制御することで実現した。周ひずみは、周変位を供試体の初期周長で除して求めた。いずれの拘束条件においても等方応力状態とし、軸差応力は供試体を保持するために約 0.2MPa かけるのみとした。ひずみ拘束条件は剛性の高い

鋼製円筒容器などでも実現できるが、供試体側面に圧電素子やひずみゲージを貼って計測することができない。また、軸方向のひずみ拘束は円筒容器内面と供試体側面との摩擦力に依存するだけなので、厳密な意味でひずみ拘束条件とはならない。

3.1.3 供試体の被覆方法

Fig.3.2 に供試体の被覆方法を示す。供試体の上下に配置するエンドピースは、中央に直径 3 mm の導水孔が設けられており、供試体とエンドピースの間には、SUS316 製 200mesh 金網を挟み、間隙流体が端面全体に行き渡るように工夫している。供試体側面には、まず、粘性の低いシリコンシーラントを塗布し、この上に熱収縮機能のある PET フィルムを被せてヒータリングガンで収縮し、密着させた。さらに、この外周にシリコン熱収縮チューブを被せた。供試体長軸方向の中央部分の外周に沿って周変位計のチェーンが直接触れるので、この部分を幅 10 mm 程度残して、その上下にシリコンシーラントを 5 mm 程度の厚みで塗布して補強した。ひずみ拘束条件で実施する試験では、岩石の周ひずみを正確に周変位計で計測できることが重要なので、周変位計のチェーンが接触する被覆部分は極力薄くして気泡などが介在しないように注意した。

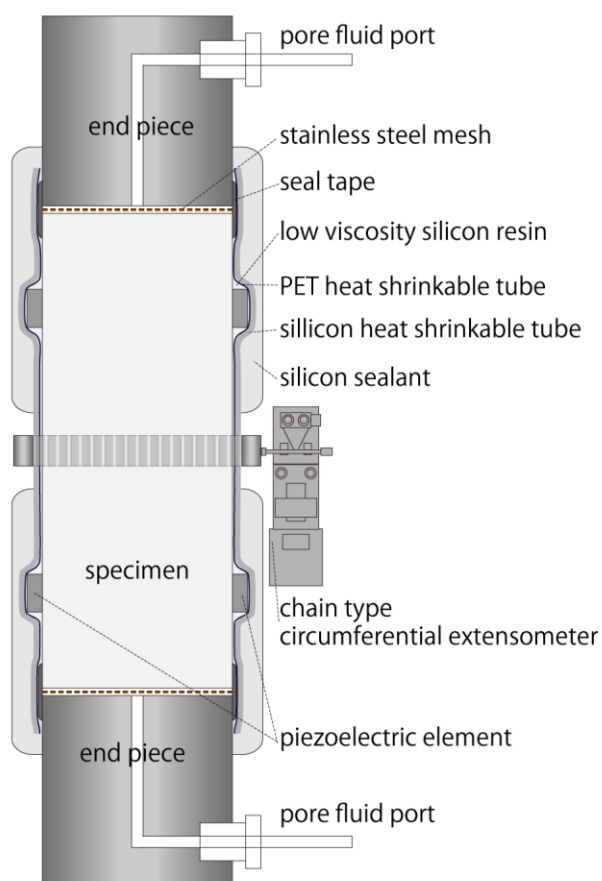


Fig.3.2 Schematic of jacketing for specimen.

3.1.4 試験手順

超臨界 CO₂ 注入に伴う挙動を調べる前に、間隙流体を N₂ として有効封圧を変更し、周ひずみ、 V_p (Xue and Ohsumi, 2004; Xue and Ohsumi, 2005b) および浸透率との関係について調査した。次に、ひずみ拘束条件で超臨界 CO₂ を注入した。この条件を維持した状態で N₂ を再注入した。さらに応力拘束条件に変更し、超臨界 CO₂ の再注入を実施した。Table.3.2 に試験条件および操作手順を示し、以下に詳述する。

Table 3.2 Experimental conditions and operating procedures.

	control	pore fluid	confining pressure MPa	pore pressure MPa	Δp MPa	temperature °C
stage I	stress	N ₂	4.00	3.06	0.10	40
			8.00	7.05	0.10	
			11.00	10.00	0.10	
			12.00	10.50	0.10	
			15.00	10.02	0.10*	
			12.00	10.00	–	
stage II	strain	N ₂ →CO ₂	variable	10.00	0.10	40
stage III	strain	CO ₂ →N ₂	variable	10.00	0.10*	40
stage IV	stress	N ₂ →CO ₂	12.00	10.00	0.10	40

* When flow does not occur, it increases Δp at a time by 0.1MPa.

3.1.4.1 過程 I : 初期状態

過程 I では、十分に乾燥し真空脱気された供試体に、封圧および N₂ 流体による間隙圧をかけ、有効封圧の変化に伴う変形、 V_p および浸透率の挙動を観測した。設定温度は 40°C に制御した。まず有効封圧が 2 MPa を超えないようにしながら、封圧と間隙圧を段階的に増加させた。封圧が 11 MPa、間隙圧が 10 MPa に達したら、次に封圧を順次 12MPa、15 MPa に増加させた後、再び 12MPa に減少させた。有効封圧は最大 5 MPa まで履歴させた。封圧/間隙圧が、4.00/3.06、8.00/7.05、11.00/10.00、12.00/10.05、15.00/10.02 および 12.00/10.08 MPa の段階において、定微流量法(Olsen, 1966)による浸透率試験を実施した(2.5 節参照)。浸透率試験は、原則として差圧を 0.1MPa とし、供試体下部を注入側に、供試体上部を排出側にする試験と、供試体上部を注入側に、供試体下部を排出側にする試験を実施し、両試験で得られた浸透率の平均値を採用して、圧力計の個体差などの測定系のエラーを排除した。流体注入時に数時間経過しても流動が生じなかった場合、流動するまで差圧を 0.1MPa ずつ上昇させた。

3.1.4.2 過程 II : ひずみ拘束/CO₂ 注入

過程 II では、N₂ で飽和された供試体の拘束条件をひずみ拘束条件に変更した後に、供試体下部の注入側を 10.1MPa で超臨界 CO₂ を圧力制御し、供試体上部の排出側を間隙圧と同じ

10.0MPa で圧力制御し、すなわち、注入側－排出側に 0.1MPa の差圧を与えて、超臨界 CO₂ を注入した。過程Ⅱ以降において、流体注入時に 24 時間経過しても流動が生じなかった場合、流動するまで差圧を 0.1MPa ずつ上昇させた。長期的な変形、封圧、 I_p および浸透率の挙動を把握するために、120 時間この状態を維持した。

3.1.4.3 過程Ⅲ：ひずみ拘束/N₂ 注入

過程Ⅲでは、ひずみ拘束条件を継続したままで、超臨界 CO₂ が注入された供試体へ、供試体上部の注入側を 10.1MPa で N₂ を圧力制御し、供試体下部の排出側を 10.0MPa で超臨界 CO₂ を圧力制御し、すなわち、注入側－排出側に 0.1MPa の差圧を与えて、N₂ を再注入した。流動が発生した後、排出側の流体をサンプリングして N₂ のブレイクスルーを確認した。24 時間 N₂ の注入を継続した後、定微流量法による浸透率試験を実施した。

3.1.4.4 過程Ⅳ：応力拘束/CO₂ 注入

過程Ⅳでは、拘束条件を応力拘束条件に変更して、N₂ が再注入された供試体へ、供試体下部の注入側を 10.1MPa で超臨界 CO₂ を圧力制御し、供試体上部の排出側を 10.0MPa で N₂ を圧力制御し、すなわち、注入側－排出側に 0.1MPa の差圧を与えて、超臨界 CO₂ を再注入した。注入開始後、流動が発生したら、排出側の流体をサンプリングして超臨界 CO₂ のブレイクスルーを確認した。約 30 時間この状態を維持した後、全試験を終了した。

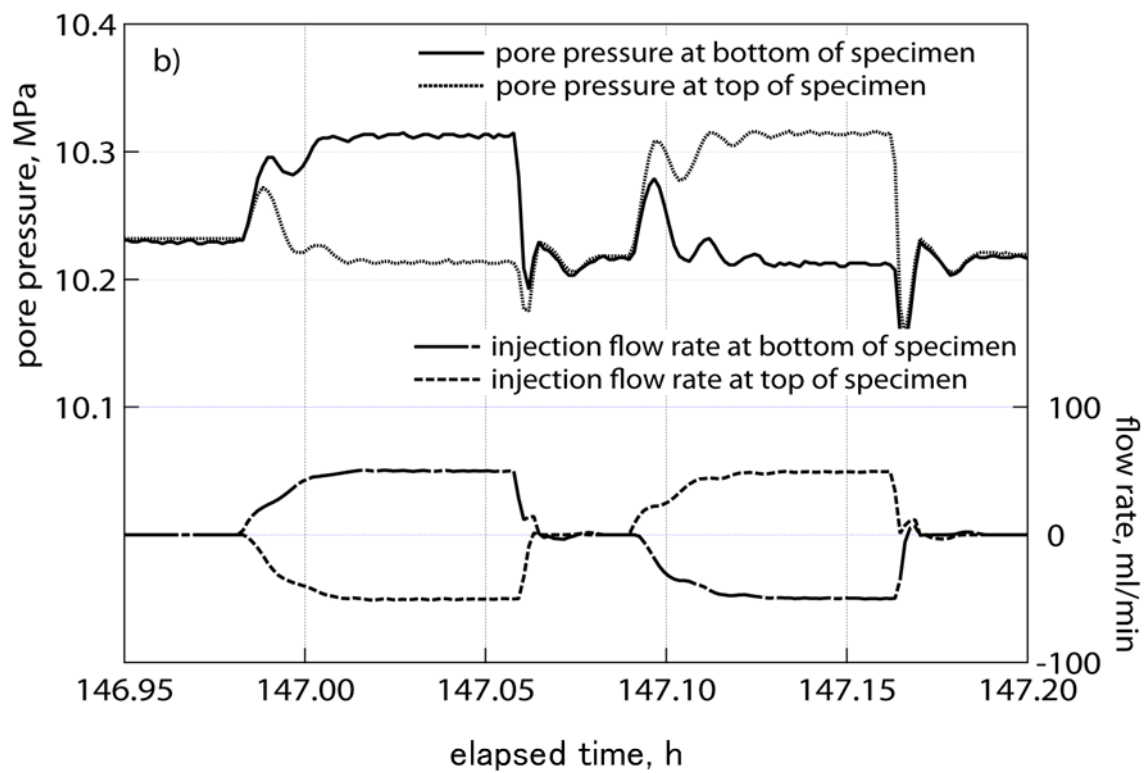
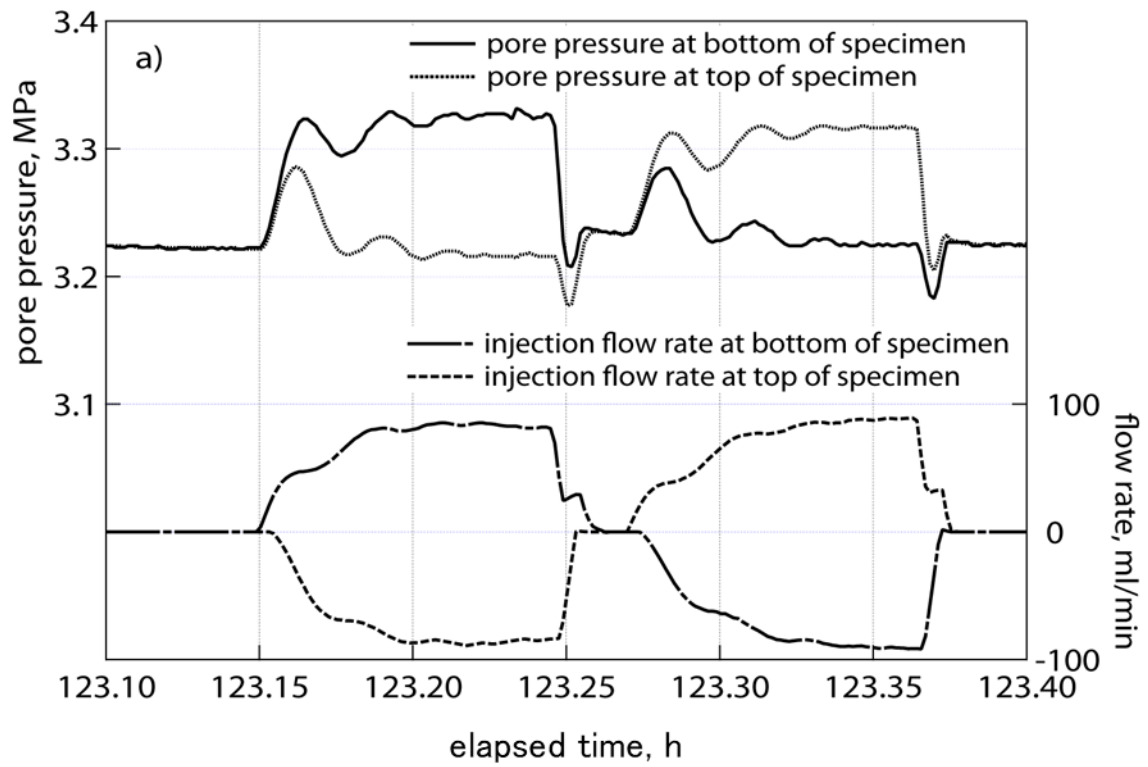
3.2 試験結果

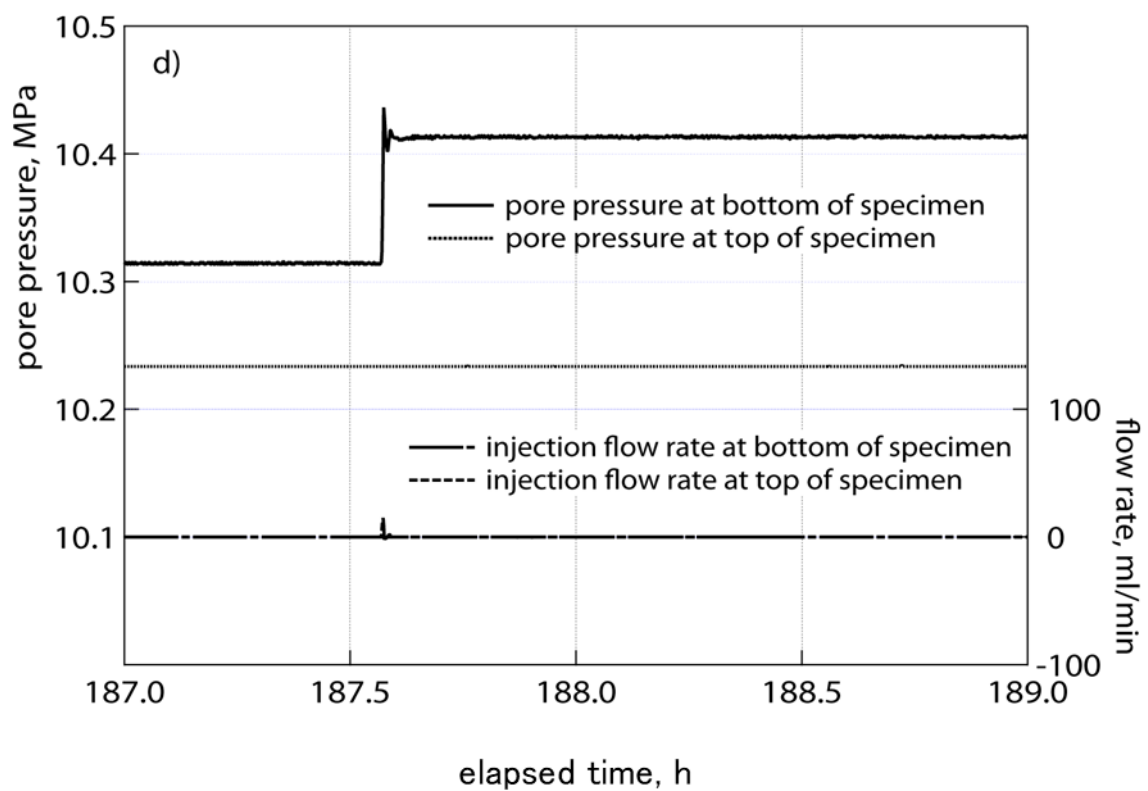
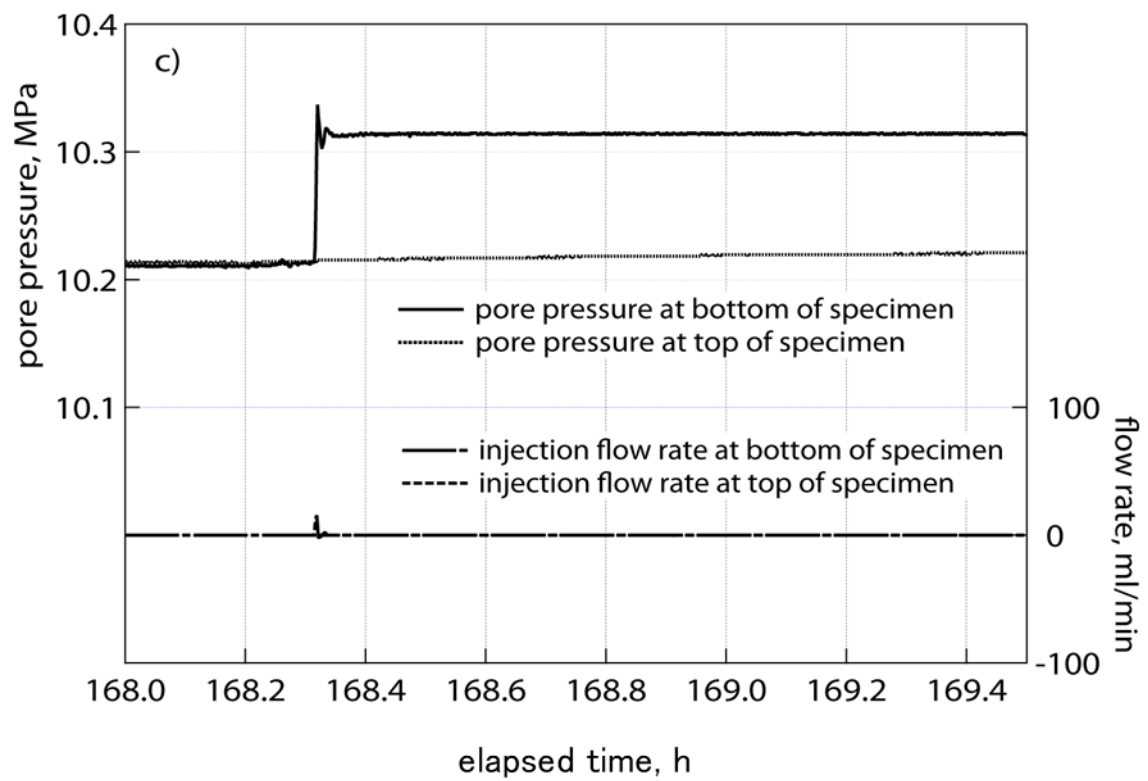
3.2.1 過程Ⅰ：初期状態

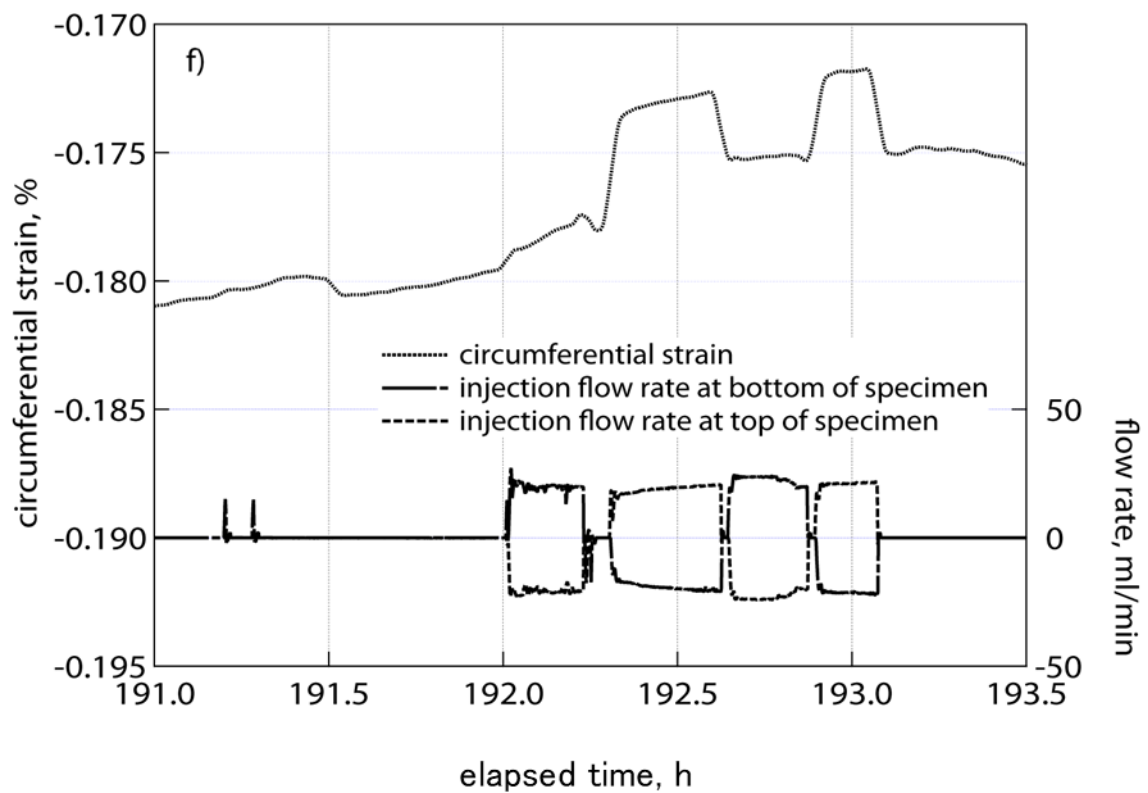
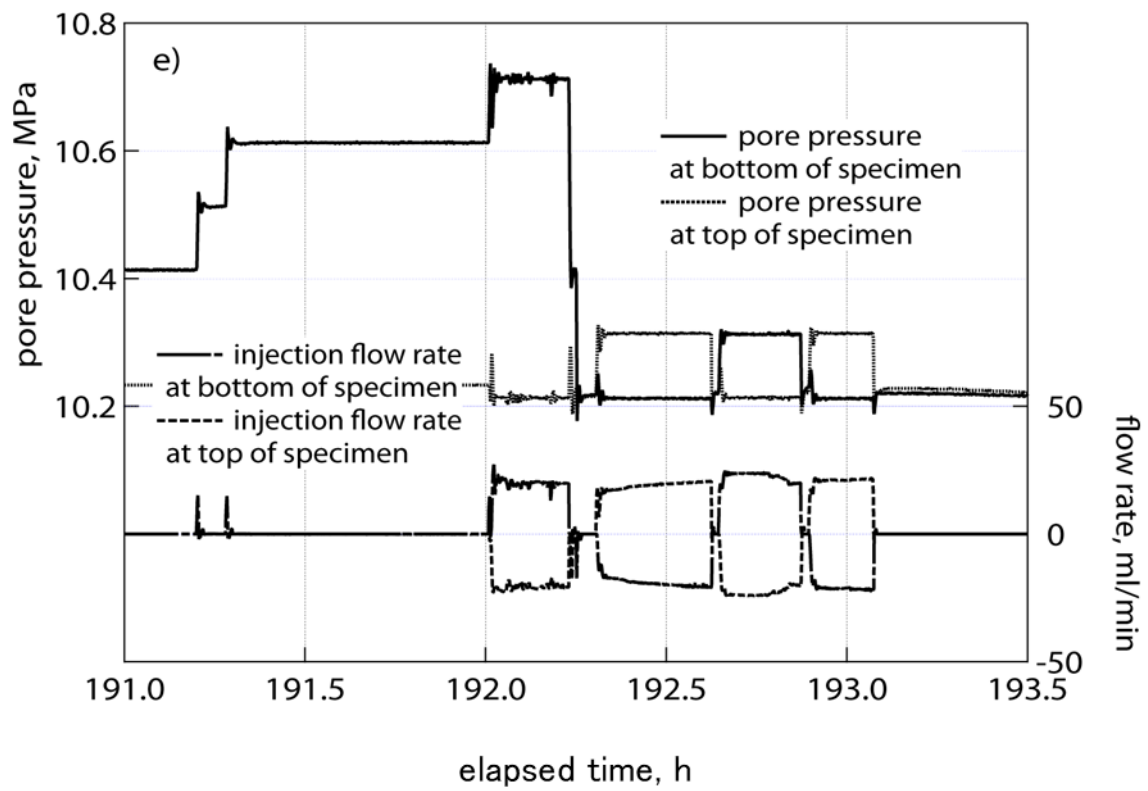
Table.3.3 に、過程Ⅰにおける浸透率試験における有効封圧、周ひずみおよび浸透率の測定結果を示す。Fig.3.3 a)～f)に浸透率試験における注入側および排出側の間隙圧と流量の経時変化の事例を示す。

Table 3.3 Measurements of effective confining pressure, circumferential strain and permeability of stage I and stageⅢ.

time h	effective confining MPa	circum strain %	permeability mdarcy
123.3	0.94	-0.090	18.1
138.6	0.95	-0.074	14.4
145.7	1.00	-0.063	12.5
147.1	1.95	-0.137	11.2
168.6	4.98	-0.383	—
188	1.92	-0.183	—
192.6	1.92	-0.174	3.9
380.4	1.69	-0.149	3.1
382.1	1.69	-0.150	3.3







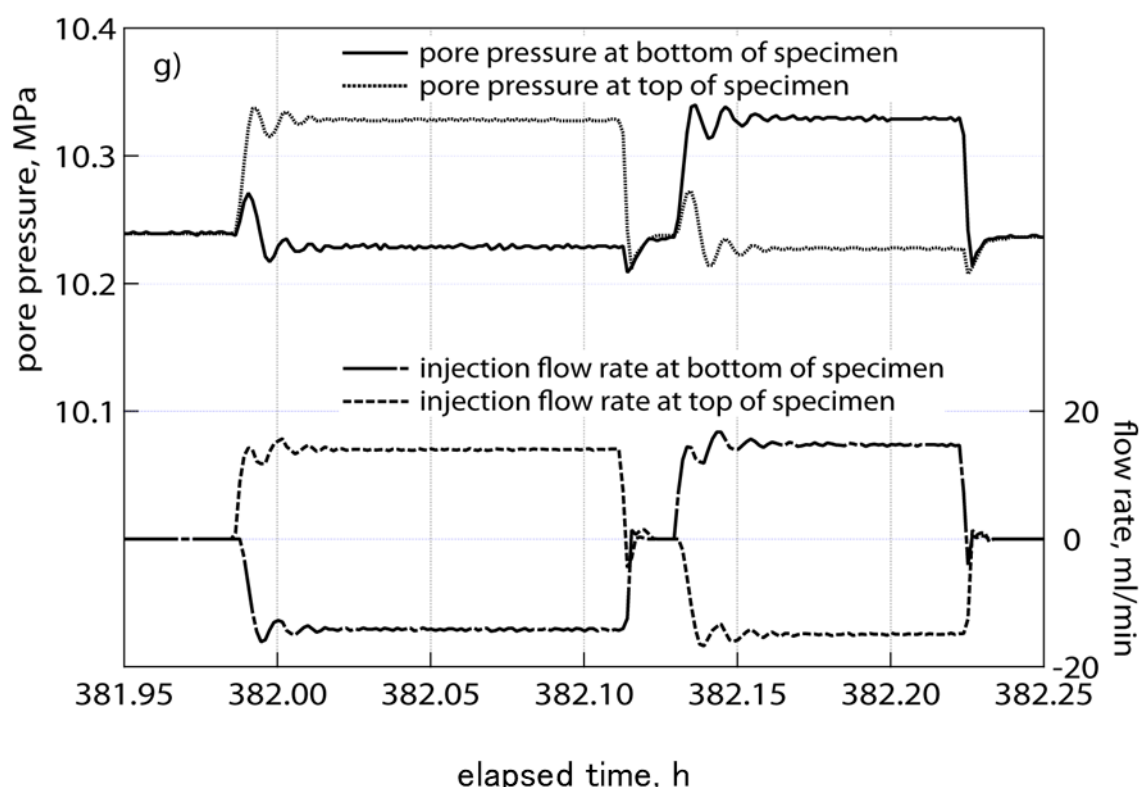


Fig. 3.3 Change of pore pressure and injection flow rate in top and bottom of the specimen in permeability test with steady-state method. a) Effective confining pressure: 1MPa, b) Effective confining pressure: 2MPa, c) Effective confining pressure: 5MPa, flow didn't occur. d) Effective confining pressure: 2MPa, flow didn't occur. e) Effective confining pressure: 2MPa. When the differential pressure is 0.5MPa, flow occurred. f) Change of circumferential strain of this time with flow rate. When the circumferential strain exceeds -0.18%, flow started. g) Effective confining pressure: 2MPa, Flow after the re-injection of N_2 .

Fig.3.3 a)において、有効封圧が約 1 MPa(封圧/間隙圧が 4.00/3.06MPa)における流量は 100 cm^3/min 足らずを示すが、Fig.3.3 b)において、有効封圧が約 2 MPa(封圧/間隙圧が 12.00/10.05MPa)における流量は 60 cm^3/min に減少した。Fig.3.3 c)において、有効封圧が約 5 MPa(封圧/間隙圧が 15.00/10.02MPa)では流動が発生せず、定微流量法による浸透率の評価はできなかった。Fig.3.3 d)において、有効封圧を約 2 MPa(封圧/間隙圧が 12.00/10.08 MPa)に戻したが、流動が発生せず、定微流量法による浸透率の評価はできなかった。そこで、段階的に注入側の圧力を上げて差圧を増加したところ、Fig.3.3 e)に示すように差圧が約 0.5 MPa のときに流動が発生した。以降、差圧を 0.1 MPa にしたが流動が確認された。このときの周ひずみの変化を流量変化とともに Fig.3.3 f)に示す。試験開始から 192 時間の周ひずみが-0.18%を超えたところで流動が始まり、それ以降は-0.18%を下回っていない。

Fig.3.4 に、初期条件設定過程における弾性波の観測波形を示す。試験開始から 142.13 時間までの有効封圧を 2 MPa 以下に抑えて封圧および間隙圧を増加する過程では、初動の位置の変化は少なく振幅も小さいが、それ以降の有効封圧を増加させる過程では、伝播時間は短くなり振幅も増大した。

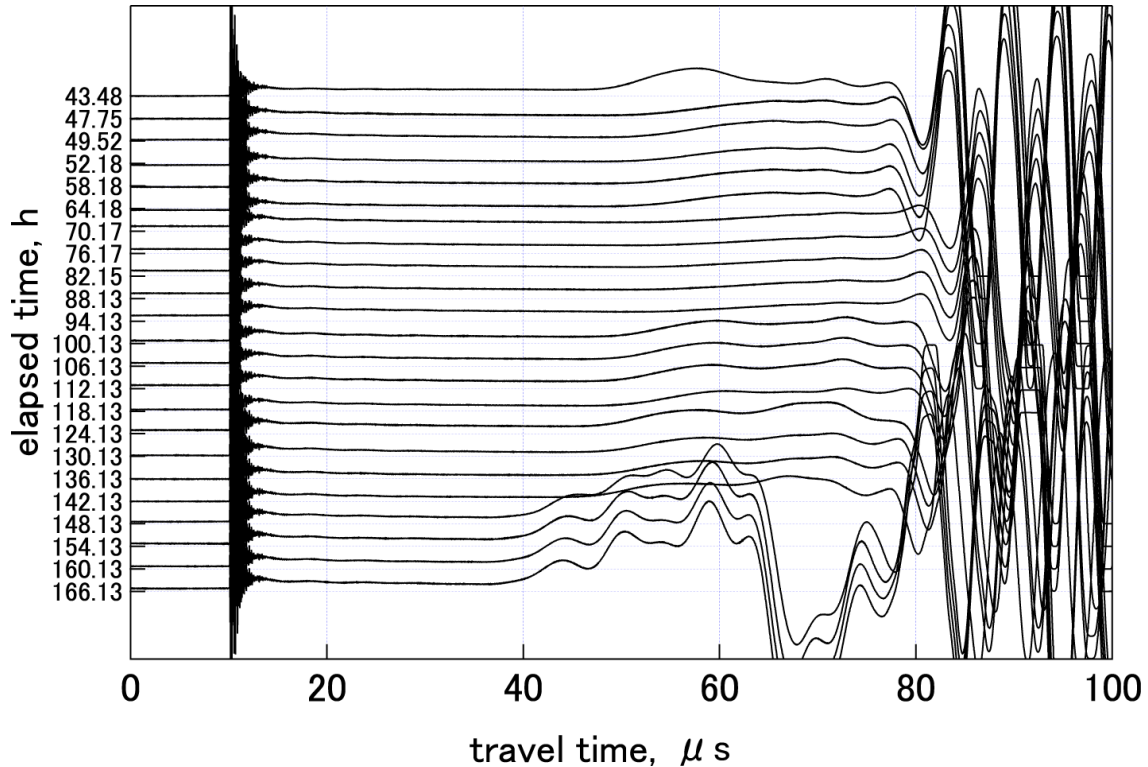


Fig.3.4 Observed waveform of V_p in Stage I .

3.2.2 過程Ⅱ：ひずみ拘束/ CO_2 注入

ひずみ拘束状態の N_2 で飽和された石炭供試体に、超臨界 CO_2 を注入した際の長期間の周ひずみ、封圧、注入および排出流量、注入側および排出側の間隙圧の観測結果を Fig.3.5a)～b)に示す。Fig.3.5 b)は、Fig.3.5 a)の 235 時間までの部分を時間軸だけ拡大している。超臨界 CO_2 の著しい浸透は注入開始直後に限定される。その後、流動が停止している期間がほとんどで、ときどき、わずかな流動が発生している。これらの流動は、注入流量と排出流量がほぼ同時に観測されており、供試体への局所的な注入や供試体からの局所的な排出が生じたのではないことを示し、浸透率がきわめて低くなった供試体でこのような間歇的な流動が起こるメカニズムは興味深い。封圧は、超臨界 CO_2 の注入開始前の 12 MPa から、最大 18 MPa まで増加した。長期的には初期に増加と漸減を示すが、 CO_2 注入後 50 時間以降はほとんど変化していない。270 時間以降において、間隙圧が変動している部分があるが、これはトランジェントパルス法による浸透率測定を試みた部分である。結果的に浸透率を評価できるデータは得られなかったため、この領域における浸透率は不明である。

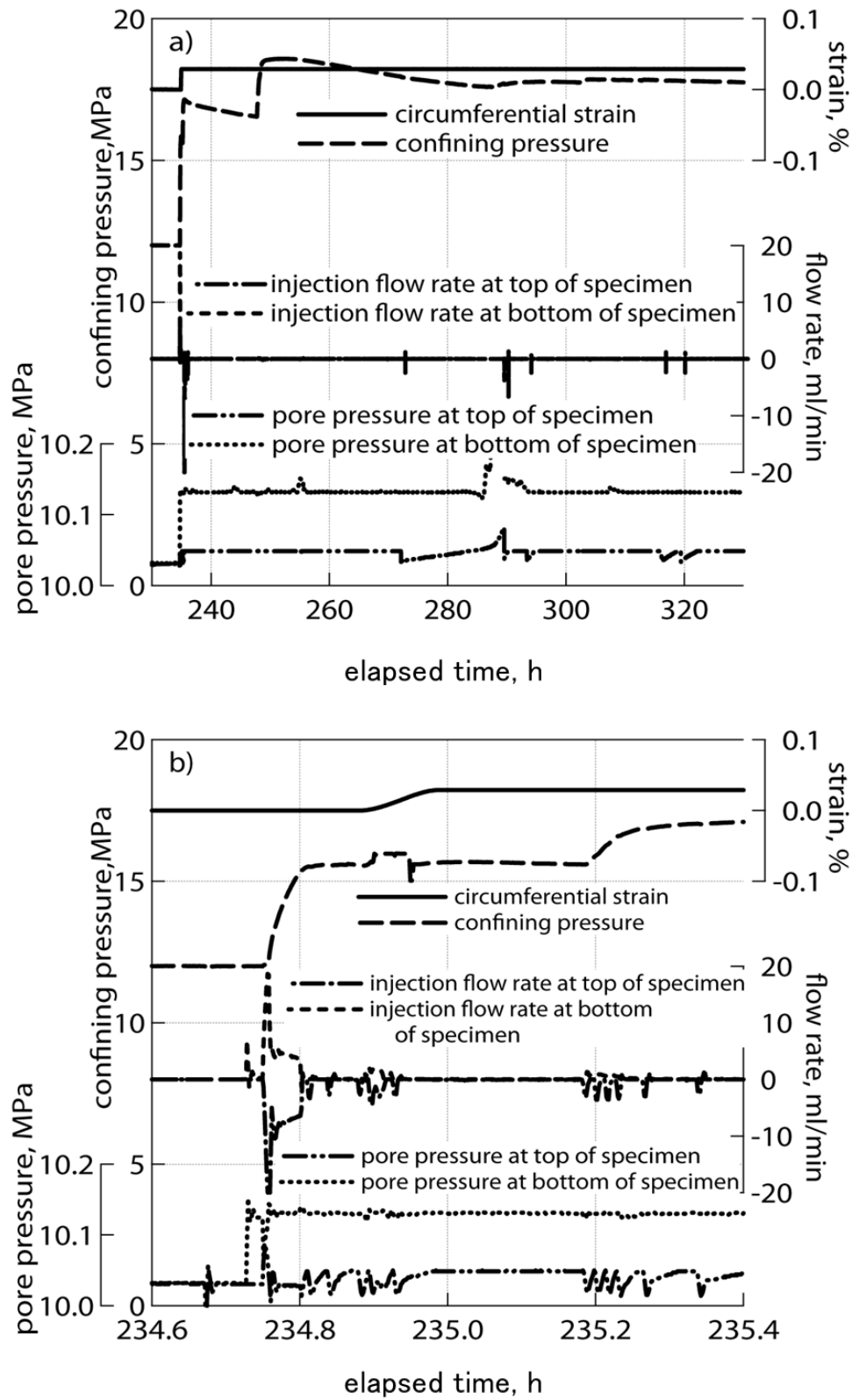


Fig.3.5 Change of circum strain, confining pressure, flow rate and pore pressure in Stage II , a) whole period and b) between 234.6 and 235.6 hour of Stage II .

ひずみ拘束状態の N_2 で飽和された石炭供試体に超臨界 CO_2 を注入する際、供試体に至近のバルブを一旦閉じ、注入側の超臨界 CO_2 を排出側の N_2 の 10.0 MPa より約 0.1 MPa 高い 10.1 MPa に設定し、圧力の安定を確認し、バルブを開いて注入を開始した。Fig.3.5 b)を見ると、注入開始直後、超臨界 CO_2 注入流量および N_2 排出流量はいずれも約 $20 \text{ cm}^3/\text{min}$ まで急増し、これに呼応して差圧が減少して注入側および排出側の間隙圧がどちらも約 10.5 MPa となるが、すぐに差圧は 0.1 MPa の設定値に戻っている。注入開始後、流量が約 $20 \text{ cm}^3/\text{min}$ を示した時点で封圧が増加し始め、一方で流量は急激に減少した。数分後には連続した流動は見られなくなり、間歇的に数 cm^3/min の注入が生じては、すぐに流動が停止する状態となった。この変化とともに封圧の増加も緩やかとなるが、間歇的な注入に呼応した増加が数回確認された。周ひずみは、超臨界 CO_2 注入開始前後で変化せず、ひずみ拘束制御がプログラム通りに動作していることを示す。しかし、注入開始から約 10 分でわずかな増加を示し、制御が乱れた。本試験においてひずみ拘束制御が異常を示したのはここだけであったが、その量と試験全体に及ぼす影響はきわめて低い。

ひずみ拘束条件で超臨界 CO_2 を注入する過程における弾性波の観測波形を Fig.3.6 に示す。注入開始に対応して試験開始から 234.78 時間以降、弾性波の伝播時間は短くなり振幅も著しく増大した。

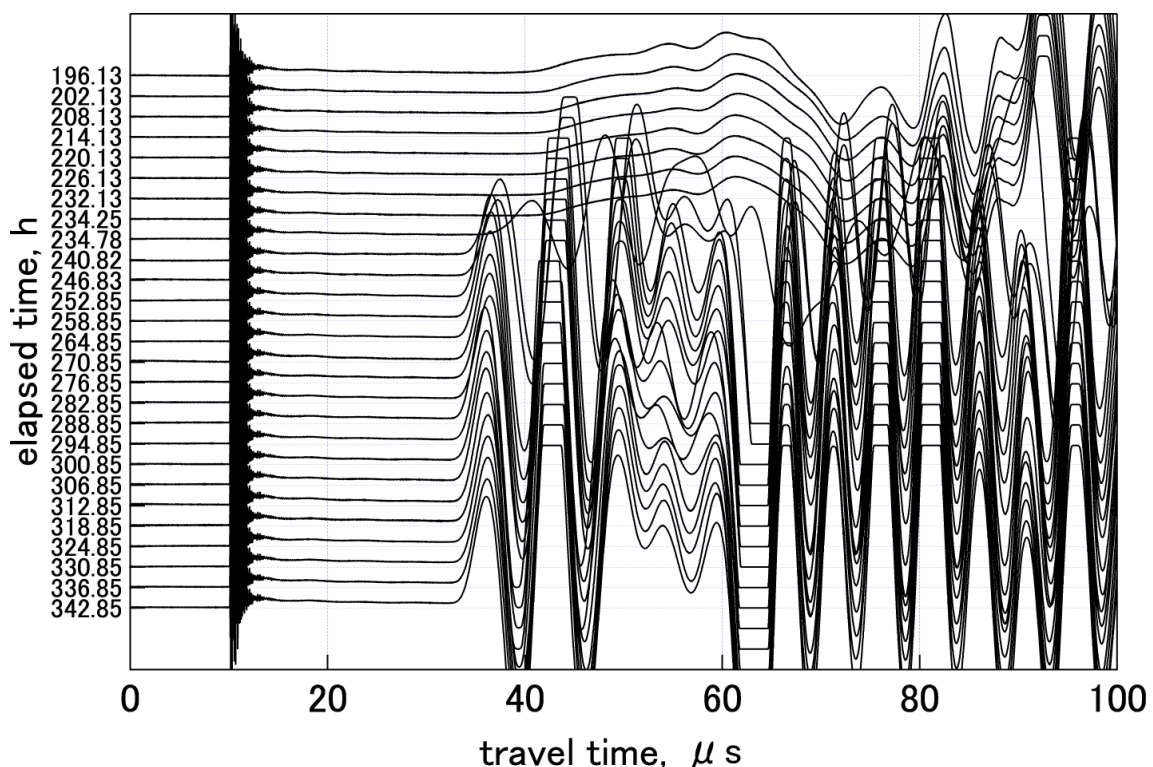


Fig.3.6 Observed waveform of V_p in Stage II.

全試験期間における V_p の変化を Fig.3.7 に示す。過程 I で間隙が N_2 で飽和された初期状態

で V_p は 1.6 km/s を示したが、過程Ⅱでひずみ拘束条件における超臨界 CO_2 の注入開始と同時に V_p は 2.1 km/s まで著しく増加した。

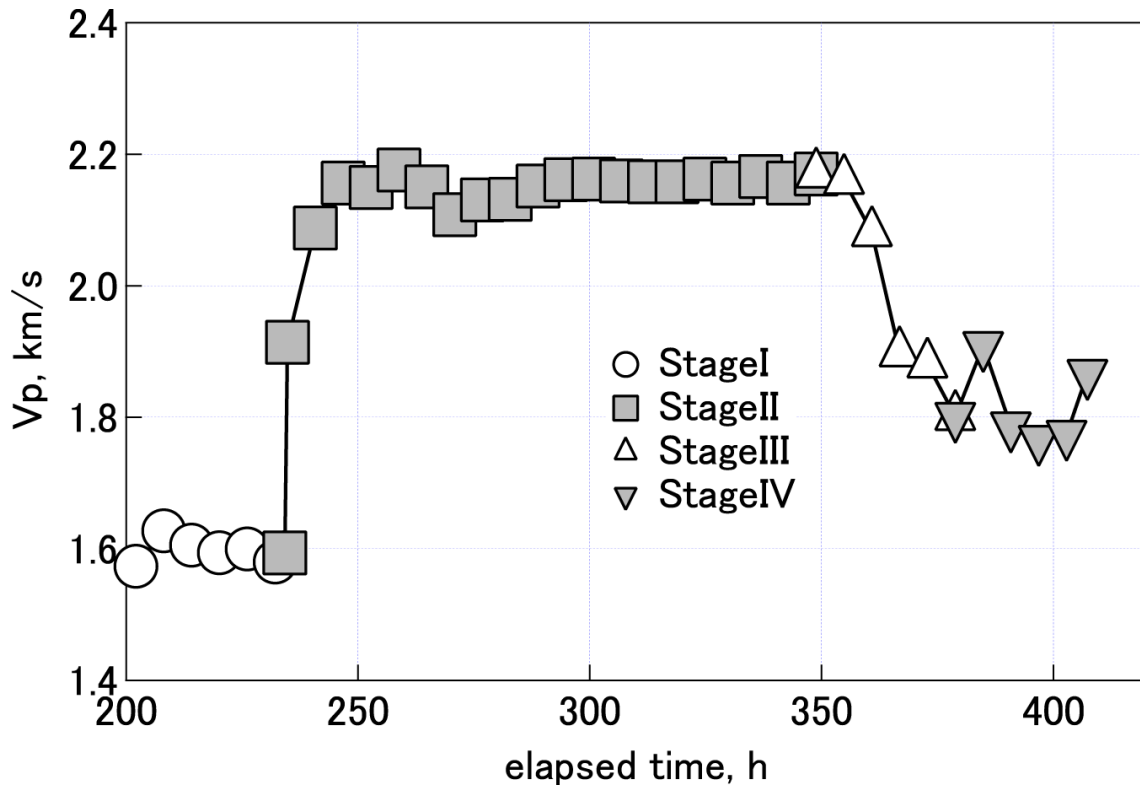


Fig.3.7 Change of V_p in the whole period.

3.2.3 過程Ⅲ：ひずみ拘束/ N_2 注入

ひずみ拘束条件で超臨界 CO_2 が注入された供試体に、拘束条件は変更せずに N_2 を再注入した際の注入および排出流量、注入側および排出側間隙圧、封圧および周ひずみの経時変化を Fig.3.8 a) および b) に示す。図中、354 時までは差圧 0.1 MPa で超臨界 CO_2 の注入を継続していたが、流動は停止した状態であった。ここで、 N_2 が接続されている供試体上部の間隙圧を超臨界 CO_2 接続されている供試体下部の間隙圧より 0.1 MPa 高くし、差圧 0.1 MPa で N_2 の再注入を開始した。ポンプおよび配管内の流体が圧縮されるため、瞬間的に見掛け上の流量が増加するが、供試体への浸透は発生していないのですぐに流量はゼロに戻った。40 分後には、差圧を 0.2 MPa に変更したが、浸透は発生しなかった。 N_2 再注入開始から 4 時間後、差圧を 0.3 MPa に変更した。瞬間的な流量増加が見られた後に、少しずつ注入および排出流量が増加し始めた。Fig.3.8 b) を見ると、差圧を 0.3 MPa に変更後、約 30 分後に封圧が減少し始め、17.5 MPa から 13.0 MPa に収束している。 N_2 の再注入においても、ひずみ拘束制御のため周ひずみの変化はまったく見られない。

Fig.3.3 g) において、 N_2 の再注入後の有効封圧が約 2 MPa における流量は 18 cm^3/min で、過程Ⅰに比較すると低い値を示した。

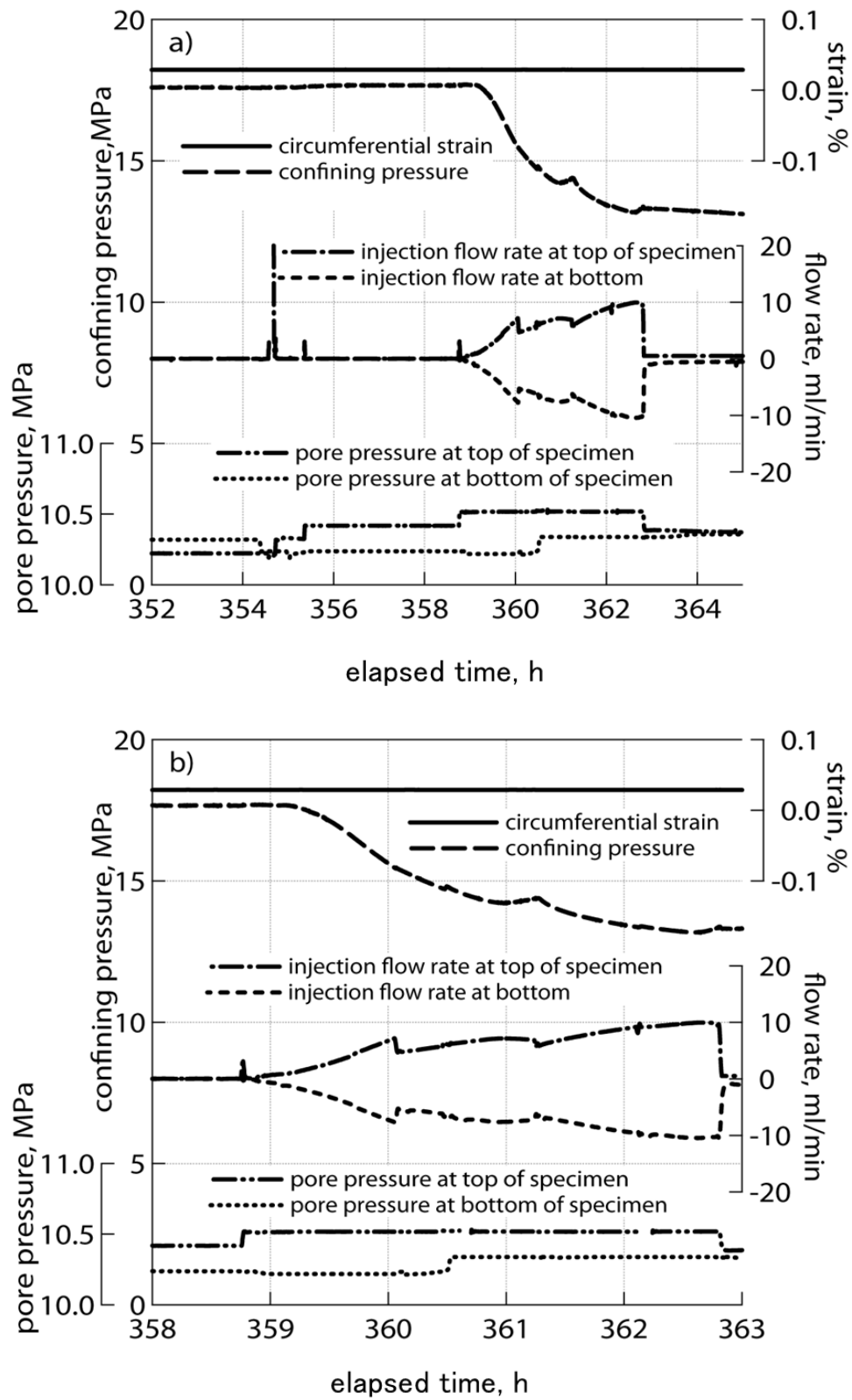


Fig.3.8 Change of circum strain, confining pressure, flow rate and pore pressure in Stage III, a) whole period and b) between 352.0 and 356.0 hour of Stage III.

ひずみ拘束条件で N_2 を再注入する過程における弾性波の観測波形を Fig.3.9 に示す。注入開始は試験開始から 354 時間で、これ以降、弾性波の伝播時間は徐々に長くなり振幅も減少した。Fig.3.7 に示すように、ひずみ拘束条件における N_2 再注入では、注入開始後数時間遅れて V_p の減少が始まり、1.8 km/s まで減少した。超臨界 CO_2 注入時の V_p の急激な増加に比較すると、 N_2 再注入時の V_p の減少は緩やかである。

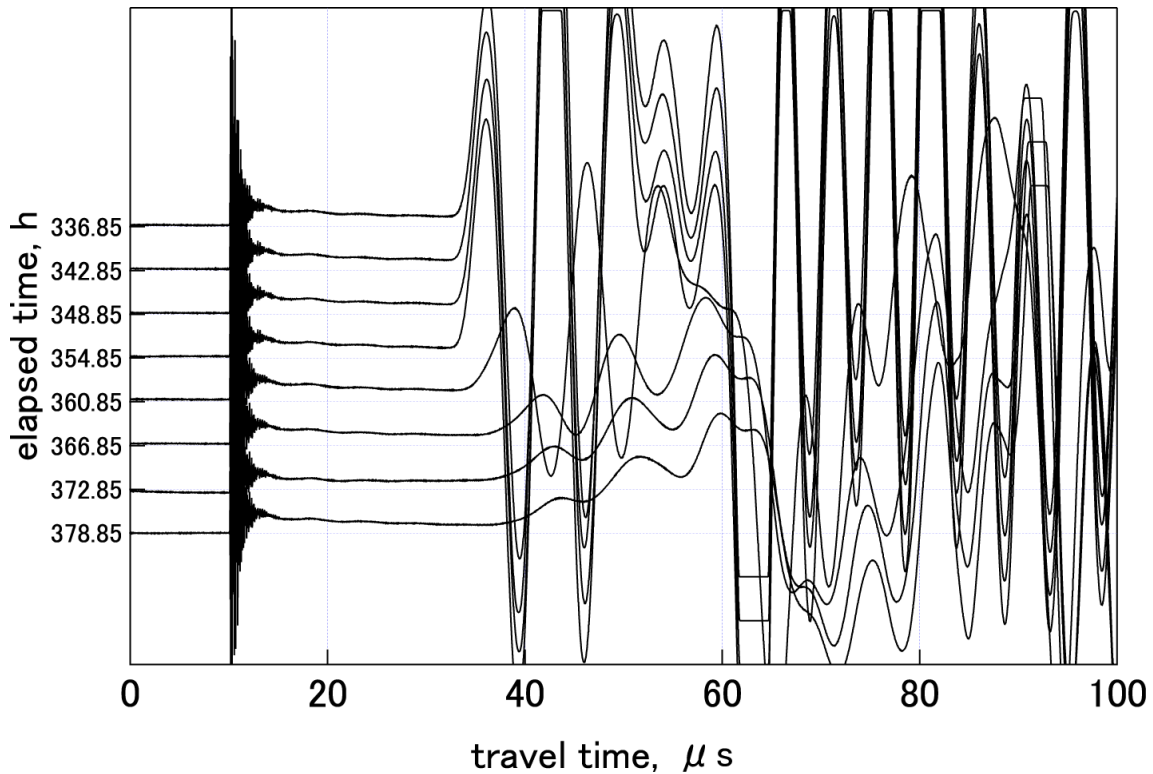


Fig.3.9 Observed waveform of V_p in Stage III.

3.2.4 過程Ⅳ：応力拘束/ CO_2 注入

ひずみ拘束条件で N_2 が再注入された石炭供試体の拘束条件を応力拘束条件に変更し、超臨界 CO_2 を再注入した際の注入および排出流量、注入側および排出側間隙圧、封圧および周ひずみの経時変化を Fig.3.10 に示す。ここでは、封圧を 12.0 MPa で圧力制御し、注入側の超臨界 CO_2 の間隙圧を排出側の N_2 の 10.0 MPa より約 0.1 MPa 高い 10.1 MPa に設定して注入を開始した。注入開始直後、超臨界 CO_2 注入流量および N_2 排出流量はいずれも約 6 cm^3/min まで急増し、これに呼応して周ひずみが増加し始めた。その後、超臨界 CO_2 注入流量および N_2 排出流量は約 4 cm^3/min まで若干の減少傾向を示し、注入開始から約 1.5 時間以降はわずかな増加に転じ、注入終了までわずかな増加傾向を示した。ひずみ拘束条件の場合と異なり、流量が急激に減少したり、停止したりすることはない。周ひずみは注入が終了するまで増加し続け、約 0.6% の膨張を示し、それ以降の変化はほとんど見られない。

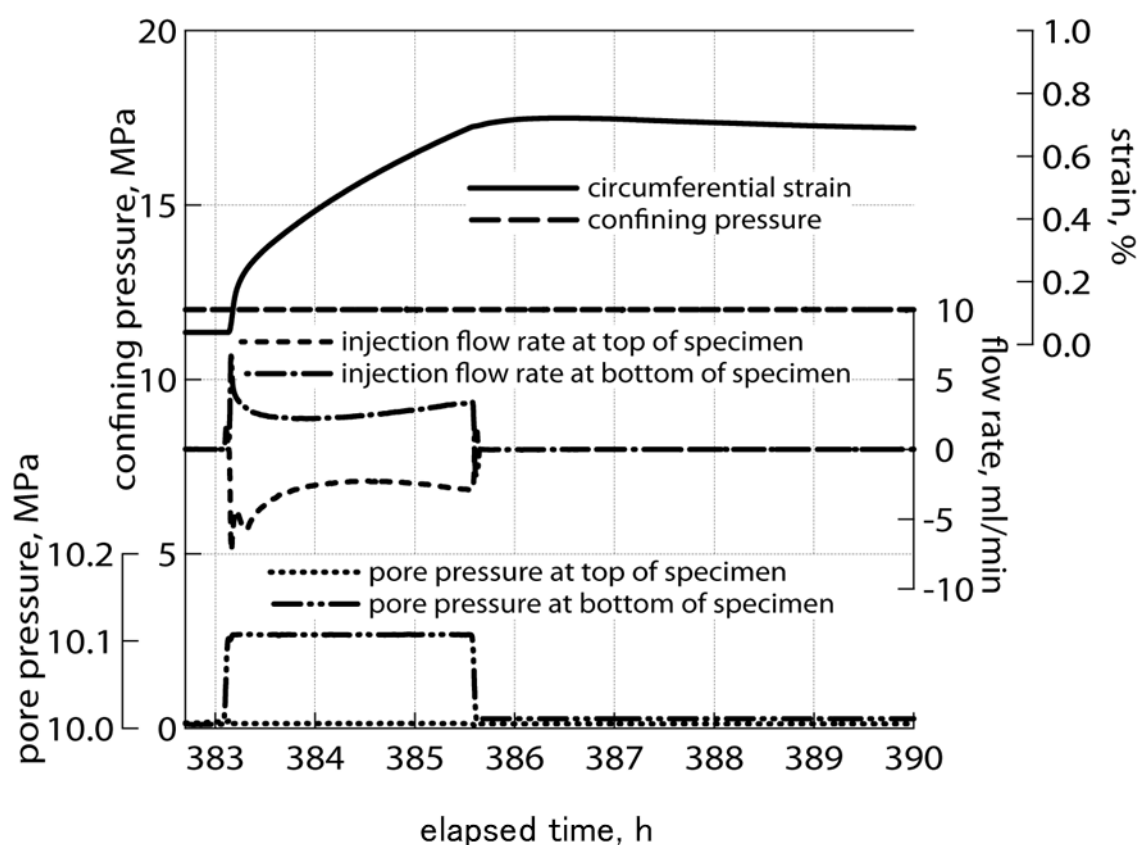


Fig.3.10 Change of circum strain, confining pressure, flow rate and pore pressure in StageIV.

応力拘束条件で超臨界 CO_2 を再注入する過程における弾性波の観測波形を Fig.3.11 に示す。注入開始は試験開始から 383 時間で、この前後で、弾性波の伝播時間は短くなり振幅も増大しているが、その後、伝播時間および振幅が戻った。407.38 時間の波形も伝播時間が短く振幅が大きいが、大局的には伝播時間や振幅の増減は見られない。

Fig.3.7 に示すように、応力拘束条件における超臨界 CO_2 再注入では、 V_p は 0.1 km/s 程度の小さな幅で変動を示すが、大局的には変化を示さない。

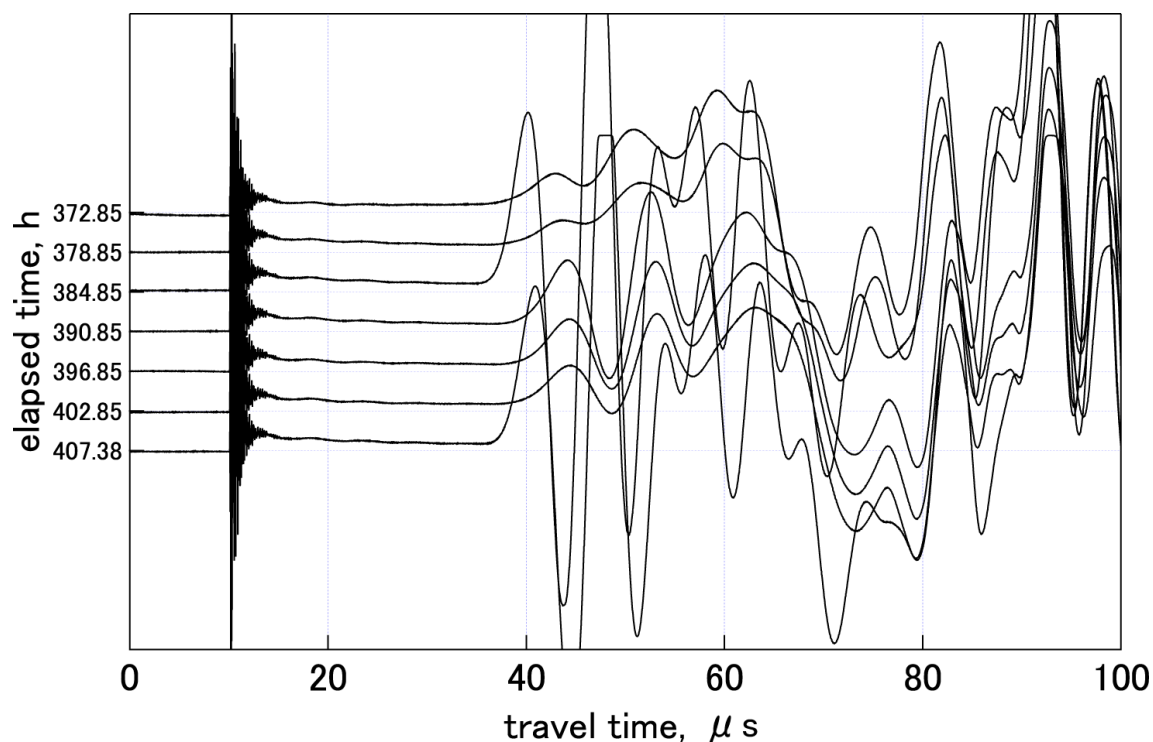


Fig.3.11 Observed waveform of V_p in Stage IV.

3.3 本章のまとめ

3.3.1 有効封圧, 周ひずみと v_p の関係

過程 I ～ IV において計測された V_p と有効封圧の関係を Fig.3.12 に示す。拘束条件および間隙流体の違いに関わらず, V_p と有効封圧は正の相関を示し, この関係を近似した曲線は有効封圧が低い領域で勾配が大きい。また, 過程 I ～ IV において計測された V_p と周ひずみの関係を Fig.3.13 に示す。間隙流体が N_2 で有効封圧を変化させている○で示した領域では, V_p と周ひずみは負の相関を示す。ひずみ拘束条件で超臨界 CO_2 を注入した□で示した領域と N_2 を再注入した△で示した領域では, 当然周ひずみに変化はなく, 前者で V_p が増加し, 後者で減少している。応力拘束条件で超臨界 CO_2 を再注入した▽で示した領域では, 周ひずみが -0.2% から 0.7% まで大きく変化しているにもかかわらず V_p の変化はほとんどない。

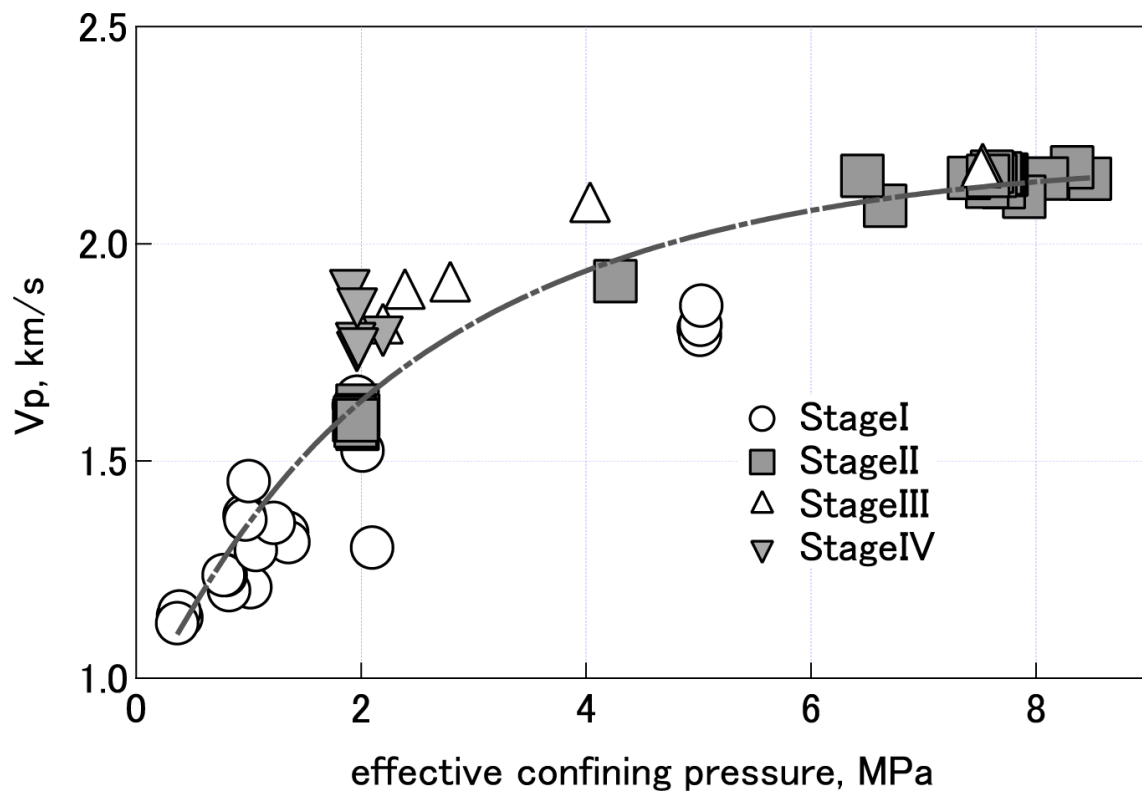


Fig.3.12 Relationship between V_p and effective confining pressure.

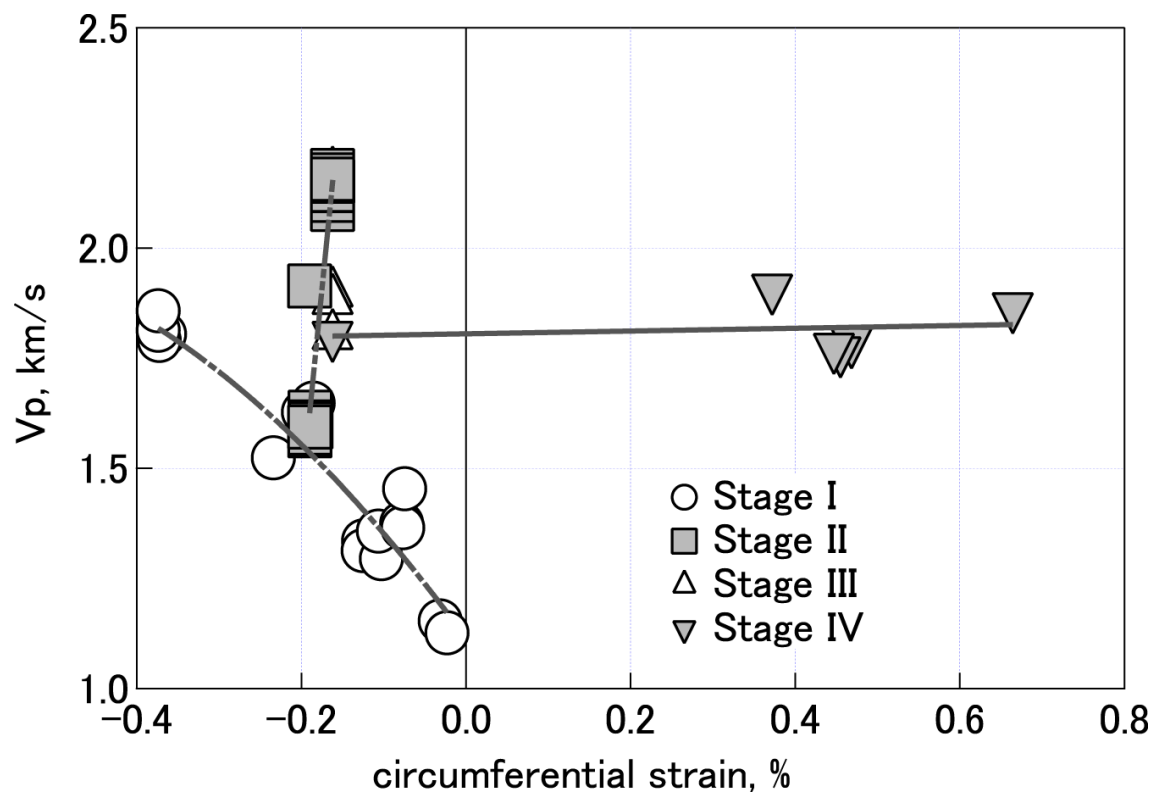


Fig.3.13 Relationship between V_p and circumferential strain.

計測された周ひずみをはじめ石炭の巨視的な変形は、マトリクスの膨張・収縮による変形と炭理の開閉による変形で構成されと考えられる。過程Ⅰにおいて有効封圧の増加に伴いマトリクスの収縮と炭理の閉鎖は同時に進行するが、過程Ⅱでは超臨界 CO_2 の注入に伴いマトリクスが膨張しようとするひずみ拘束条件を維持するために封圧が上昇し、炭理が閉鎖される。過程Ⅲでは反対に N_2 の注入に伴いマトリクスが収縮しようとするひずみ拘束条件を維持するために封圧が低下し、炭理が開閉される。過程Ⅳでは超臨界 CO_2 の注入に伴いマトリクスが膨張しようとするひずみ拘束条件では変形が許容されるので、炭理の開閉・閉鎖は大局的には起こらない。石炭の I_p は炭理の開閉に強く支配され、炭理の開閉は有効封圧に依存すると考えられるが、供試体の巨視的な変形の計測から炭理の開閉に伴う変形だけを抽出することはできない。一方、浸透率も炭理の開閉に敏感であると考えられるので、次に有効封圧、浸透率と周ひずみの関係を考察する。

3.3.2 有効封圧、浸透率と周ひずみの関係

Fig.3.14 に、間隙流体が N_2 でほぼ飽和されている際の有効封圧と周ひずみの関係を◇で、超臨界 CO_2 注入前および N_2 再注入後の N_2 の浸透率をそれぞれ○および△で示す。2つの相関を対比するために有効封圧の軸を反転しているので注意されたい。複雑な試験手順の中で、さまざまな間隙圧や時間依存の変形などが含まれるが、有効封圧と周ひずみは大局的に負の相関を示す。さらに、有効封圧/周ひずみ関係の勾配は、周ひずみが $0 \sim -0.2\%$ までより、 $-0.2\% \sim -0.4\%$ までが大きい。超臨界 CO_2 注入前および N_2 再注入後の N_2 の浸透率と周ひずみは大局的に正の相関を示すが、周ひずみが減少して -0.2% に近づくと浸透率が急激に減少し、 -0.2% 以下で浸透率が測定できなかった。

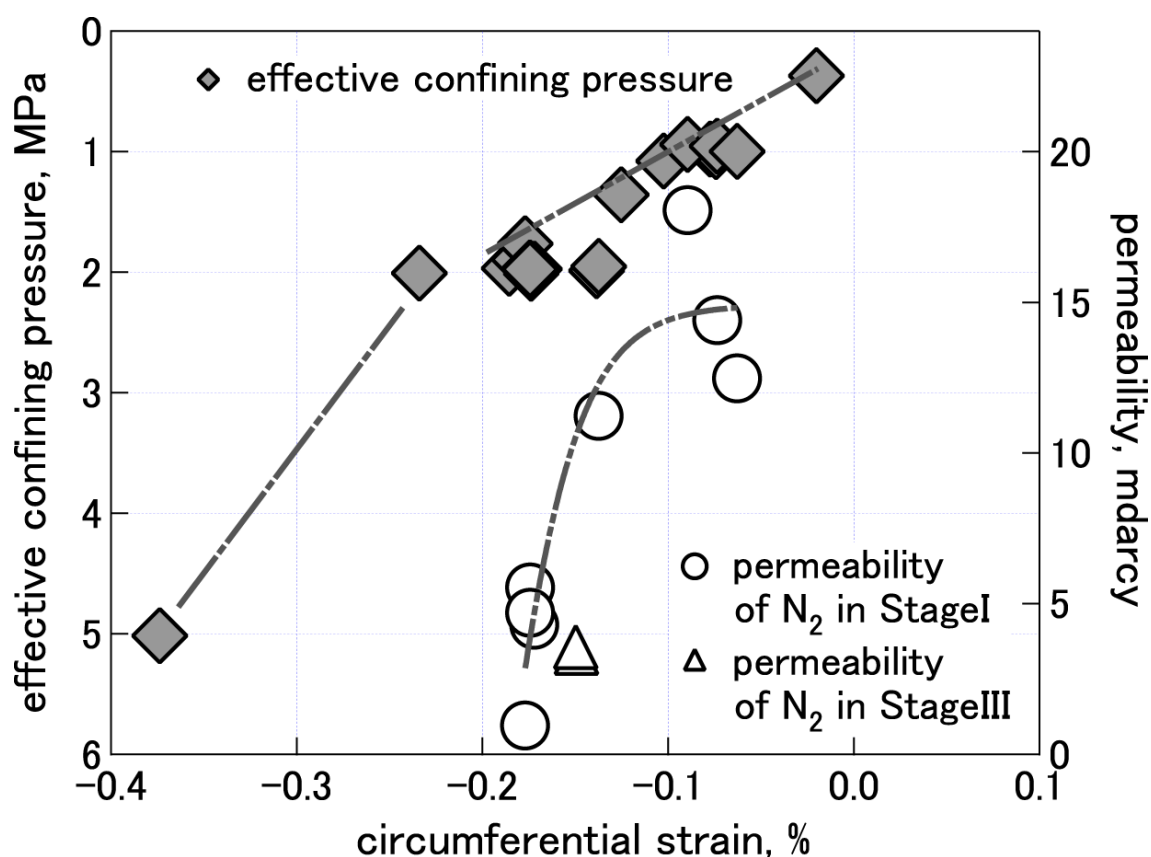


Fig.3.14 Relationship between effective confining pressure, permeability and circumferential strain.

石炭は、マトリクスと平板き裂の炭理で構成される。有効封圧が比較的低い領域と高い領域で区別すると、前者では有効封圧の増加に伴い、マトリクスの体積圧縮と炭理の閉塞が同時に進行するのに対し、後者ではすでに多くの炭理が閉塞しているので有効封圧の増加に伴いマトリクスの体積圧縮のみが進行する。前者における見かけの体積弾性率は後者のそれより低くなる。前節で述べた V_p の増加傾向が有効封圧が比較的低い領域で著しく、高い領域で緩慢となるのも、浸透率や体積弾性率の変化に調和的である。

有効封圧が比較的高い領域では、流体の流路となる炭理がほとんど閉塞してしまうので、浸透率は著しい低下を示すものと考えられる。また、厳密に言えば有効封圧が浸透率を支配するのではなく、有効封圧の変化に伴うひずみが浸透率を支配する。有効封圧が 2 MPa 近傍において、Fig.3 f) で示したように周ひずみが -0.18% が以下のときは流動は発生せず、これを超えると流動が生じた。この境界付近の浸透率の変化は周ひずみにきわめて敏感であることから、開閉する炭理の数は少数で、ひずみの増加は炭理すなわちき裂の開口幅の増加につながり、浸透率は劇的に増大する。

3.3.3 ひずみ拘束条件における超臨界 CO₂ の注入および N₂ の注入に伴う石炭の挙動

ひずみ拘束条件で石炭に超臨界 CO₂ が注入されると、まず CO₂ は炭理を流路として浸入し、つ

いでマトリクスのマイクロポアに吸着され、膨潤しようとする。供試体全体はひずみ拘束条件なので、マトリクスの膨潤に伴い、炭理が閉鎖され、流路が閉ざされるために超臨界 CO_2 の浸入は抑制され、流動は停止する。ひずみ拘束条件で超臨界 CO_2 注入に伴い上昇した封圧の増分約 6 MPa は、石炭の超臨界 CO_2 の吸着に伴う膨潤圧とみなすことができる。封圧が約 4 MPa 増加したところで連続的な流動が停止したが、この後、間歇的な流動を示しながら封圧が 2 MPa 増加した。Fig.12 において、有効封圧が 6 MPa すなわち封圧が約 4 MPa 増加したところから有効封圧が 8 MPa までの I_p の増加はわずかである。 I_p が平板き裂の有無に敏感であることを考慮すると、連続的な流動が停止した時点で、ほぼ完全に炭理は閉塞したものと考えられる。

ひずみ拘束条件を維持した状態で、石炭に N_2 が注入されると、炭理が閉塞しているために、すぐに流動は発生しない。わずかな開口幅の炭理および低い浸透率のマトリクスに N_2 が浸透し、 CO_2 と N_2 が置換され、マトリクスが収縮すると、供試体全体はひずみ拘束条件なので炭理が開口する。一旦、炭理が開口して N_2 の浸透が開始すると、 CO_2 と N_2 の置換とマトリクスの収縮も加速され、炭理はさらに開口し、浸透率は加速的に増加する。Fig.12 において、 I_p は N_2 の注入から数時間遅れて減少したのは、炭理の開口に対応したものと考えられる。 N_2 の注入が終了した時点で、封圧は約 13 MPa まで減少したが、12 MPa までは回復していない。また、 I_p も超臨界 CO_2 注入前の速度より大きい。本試験では時間の制約から N_2 の注入を打ち切ったが、 N_2 注入の長期間継続により、マトリクスに吸着された CO_2 が脱着して初期状態に回復するのか、マトリクスに一旦吸着された CO_2 は完全に脱着されることはないのかに関しては、今後、検討の余地を残す。

3.3.4 応力拘束条件における超臨界 CO_2 の注入に伴う石炭の挙動

応力拘束条件で石炭に超臨界 CO_2 が注入されると、まず CO_2 は炭理を流路として浸入し、ついでマトリクスのマイクロポアに吸着され、膨潤しようとする(Reucroft and Sethuraman, 1987; Mavko and Hoeksema, 1994)。ここで供試体全体は応力拘束条件なので、マトリクスが膨潤しても、炭理が直接的に閉鎖されることはない。流路が閉ざされないために超臨界 CO_2 の浸入は継続され、流動は停止せず、浸透率の大きな変化はないと考えられる(Xue and Ohsumi, 2004)。応力拘束条件で超臨界 CO_2 注入に伴い増加した周ひずみの増分約 0.6%は、石炭の超臨界 CO_2 の吸着に伴う膨潤ひずみとみなすことができる。炭理の開口幅に大きな変化がないので、 I_p には大きな変化は認められない。

3.3.5 タ張予備実験で観察された圧入量の変化

タ張予備実験では、 CO_2 圧入を継続すると圧入量は徐々に低下、 N_2 の圧入後の CO_2 圧入量改善効果は極めて短時間であったことは、1 章で述べたとおりである(Fig. 1.1)。過程 II においてひずみ拘束条件で差圧を 0.1 MPa で超臨界 CO_2 を注入すると、注入開始直後に約 20 cm^3/min の流量を示すが数分後には流動が停止したのに対し、過程 IV において応力拘束条件で差圧を 0.1 MPa で超臨界 CO_2 を注入すると、4~6 cm^3/min の流量で流動が継続し、流量の減少や流動の停止は起こらなかった。タ張予備実験において CO_2 圧入量が徐々に低下したことは、原位置の拘束

条件が応力拘束だけではなく、ひずみ拘束の要素が含まれることを示唆するものと考えられる。

水平な炭層が広い範囲で層厚方向に膨張・収縮する場合を想定すると、上方の岩盤荷重は変わらないので鉛直応力は変化しない、すなわち応力拘束されていることになる。水平方向はどうか？遠方からテクトニックな応力が作用し、これに直交する面で膨張・収縮する場合を想定すると、炭層を含めて岩盤の巨視的な剛性は大きくないのでほぼ応力拘束に近いのではないだろうか。一方、CO₂ 圧入井の孔底近傍を局所的に見ると岩盤や炭層の剛性が無視できないので、CO₂ の吸着に伴い膨張しようとする円筒形の領域がその外周の炭層に拘束されてひずみ拘束の要素が加わり、孔井近傍の接線方向応力は増加し炭層が閉塞する。これにより浸透率は低下すると思われる。

4 石炭の CO₂ 吸・脱着に伴う膨潤挙動の温度依存特性

前章まで、室内試験で石炭供試体に CO₂ および N₂ を注入して、変形特性、浸透率特性、弾性波特性に関して検討し、条件によっては著しい浸透率の低下が起こりうることを確認した。ECBM を実用化していくためには、CO₂ の高い圧入性能が確保されることが重要である。」夕張予備実験において、CO₂ の圧入を開始すると時間と共に流量が減少したこと、ここに N₂ を圧入すると流量が増加したこと、さらにここに CO₂ を圧入するとすぐに流量が減少したことを紹介した。これらの現象が、石炭の CO₂ および N₂ の吸・脱着に伴う膨潤・収縮に支配されている可能性を示唆した。そこで本章では、室内試験において、石炭供試体に CO₂ および N₂ を注入し、膨潤・収縮などの変形挙動や浸透率の変化、くわえて V_p の変化を計測し、夕張予備実験で経験した現象を再現し、定量的な評価の端緒となすことを目的とした。

4.1 石炭試料と試験方法

本章では、3 章と同様にオーストラリア、クイーンズランド州ボーエン炭田の稼行中炭層から産出した石炭を供試体として用いた。石炭ブロックから直径 50mm、高さ 125mm の円柱状に整形し、試験に供した。工業分析結果、供試体作製方法等は 2 章、3 章を参照されたい。

試験 I では応力拘束条件における CO₂ を吸着した石炭の温度変化に伴う挙動の把握を主として、試験 II ではひずみ拘束条件における CO₂ を吸着した石炭の温度変化に伴う挙動の把握を主として試験を実施した。

両試験に共通して、まず供試体の間隙を N₂ で飽和し、封圧 12MPa、間隙圧 10MPa、温度 40℃を初期状態とした。温度変化に伴う挙動を調べるため、環境温度を 40→50→40→25→40℃の順でステップ状に制御する温度変化試験を実施し、ひずみや V_p などを計測した。試験 I では封圧の制御により供試体全体が応力拘束となっているのに対し、試験 II では周変位計の取り付けられた供試体中央部分だけがひずみ拘束となっている。そこで、ひずみのデータとして、試験 I では周変位計から計算された中央部分のひずみの他に 8 枚のひずみゲージのデータを取得したのに対し、試験 II では周変位計から計算された中央部分のひずみだけを取得した。なお、一つのス

テップの温度保持時間は 24 時間とした。ここで、試験Ⅰでは封圧を 12MPa に維持した条件すなわち応力拘束条件で、試験Ⅱでは封圧を制御してひずみ(周変位計により観測された横ひずみ)が変化しないように維持した条件すなわちひずみ拘束条件で温度変化試験を実施した。次に、両試験ともにそれぞれの拘束条件を維持したままで、約 0.2MPa の差圧で超臨界 CO₂ を注入した。供試体の反対側から CO₂ が排出されるのを確認してからさらに数時間の注入を継続した後、上記と同様に温度変化試験を実施した。その後、補足的な試験を実施したが、詳細はそれぞれの試験結果の中で後述する。

4.2 試験Ⅰ：応力拘束条件における温度変化に伴う挙動

試験Ⅰにおける全過程の封圧、周変位計で計測された周ひずみおよび温度の経時変化を Fig.4.1 に示し、A から G までの 7 ステージの試験内容と補助的なステージに関しては結果の概要について触れる。

A: 応力拘束条件、すなわち封圧が一定に制御された状態で、試験の初期状態を設定した。供試体に過剰な有効封圧を履歴させないように注意した。

B: 間隙流体が N₂ における温度変化試験(試験結果は後述)を実施した。

C: 超臨界 CO₂ を注入した。これに伴い約 0.6%の膨張ひずみが観測された。

D: 間隙流体が CO₂ における温度変化試験(試験結果は後述)を実施した。

E: N₂ を再注入した。これに伴い約 0.5%の収縮ひずみが観測された。

F: 超臨界 CO₂ を再注入した。再び約 0.5%の膨張ひずみが観測され、再現性が確認された。

G: 封圧を変化させて変形特性を調査した。有効封圧とひずみは負の相関を示すことを確認した。

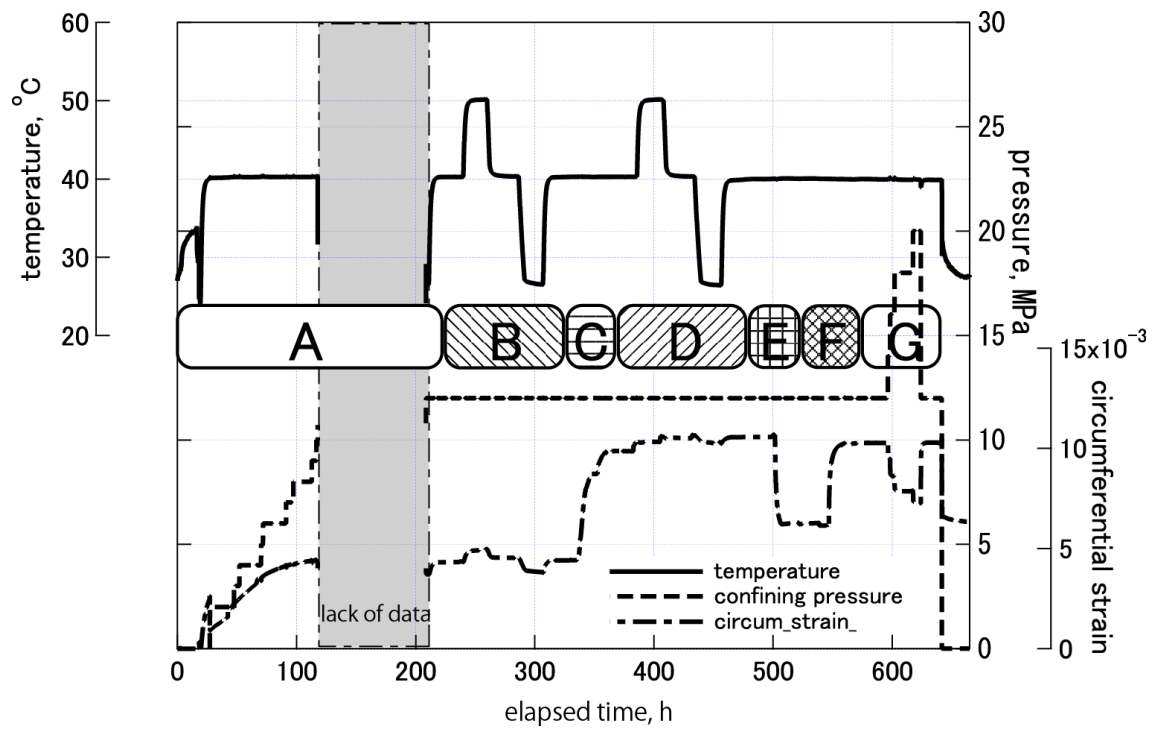


Fig.4.1 Results of confining pressure, circumferential strain and temperature observed in the experiment I .

Fig.4.2 に周変位計で観測された供試体の周方向の変形から求めた周ひずみ変化と封圧の関係を示す。これから計算した体積弾性率は 990MPa を示した。

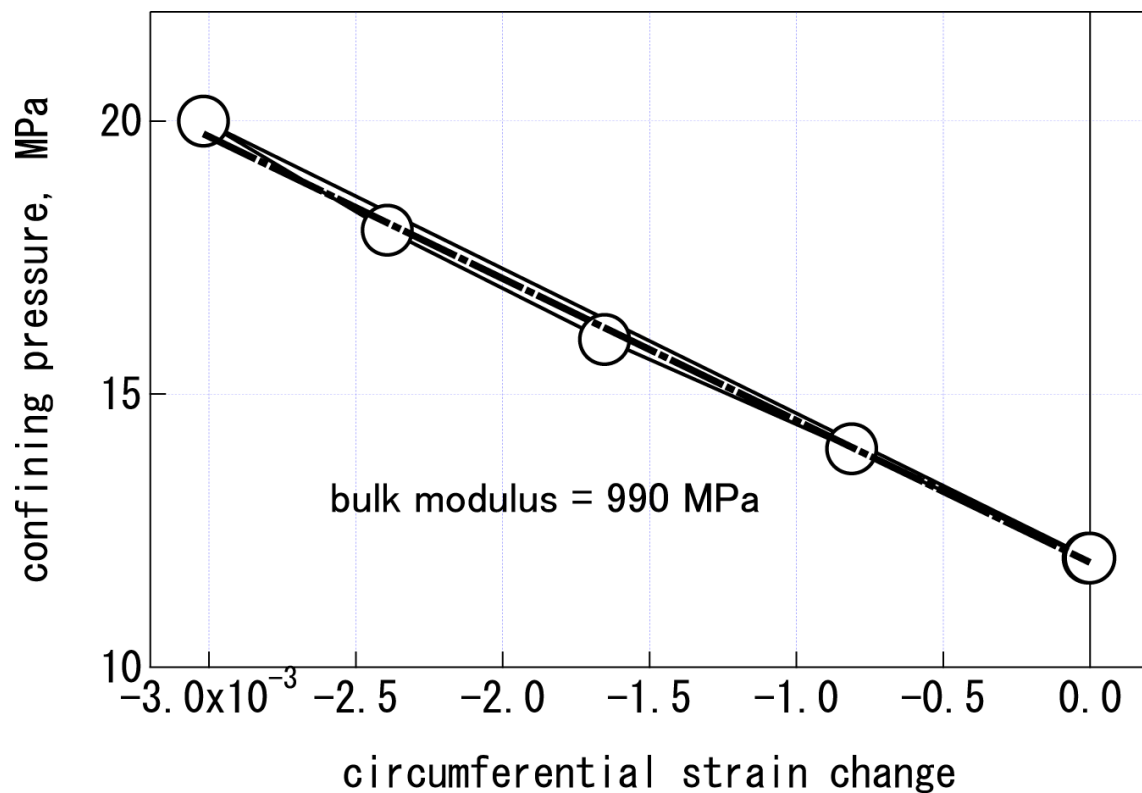


Fig.4.2 Relationship between confining pressure and circumferential strain.

ステージ B において間隙流体が N_2 における温度変化試験結果を Fig.4.3 に示す。温度が 40°C から 50°C に上昇すると、ひずみは膨張傾向を示す。温度が 50°C から 40°C 、さらに 40°C から 25°C に低下すると、ひずみは収縮傾向を示す。温度が再び 25°C から 40°C に上昇すると、ひずみは膨張傾向を示す。石炭は N_2 の吸・脱着による変形が比較的小さいので、石炭マトリクス熱膨張および収縮が支配的であると考えられる。ひずみゲージは鉄・コンクリートの線膨張係数に等価なタイプを使用しており、温度とひずみに正の相関が認められることから、石炭の線膨張係数は鉄・コンクリートのそれより大きいと考えられる。

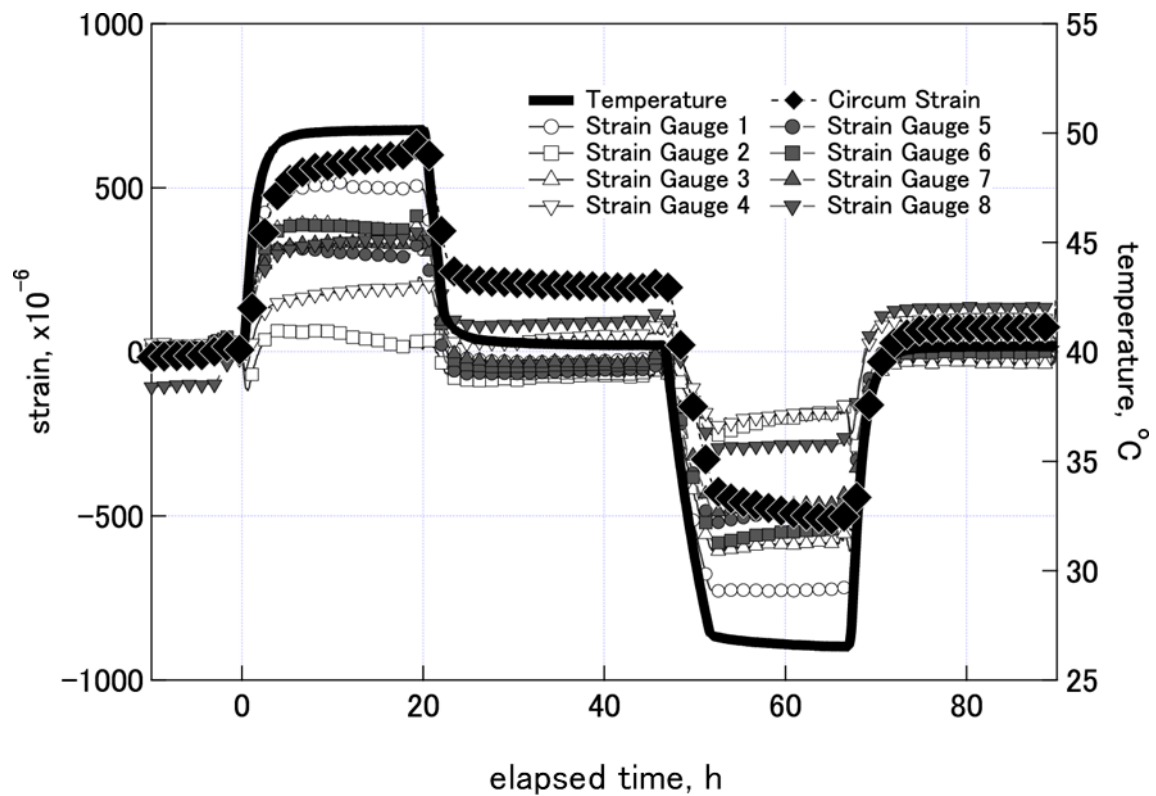


Fig.4.3 Response of strain to temperature change in the case of N₂ as pore fluid.

ステージ D において間隙流体が液体/超臨界 CO₂ における温度変化試験結果を Fig.4.4 に示す。温度が 40°C から 50°C に上昇すると、一部のひずみゲージは膨張を示したが、それ以外のひずみゲージと周変位計ではわずかに膨張した後に収縮またはほとんど変化しなかった。温度が 50°C から 40°C、さらに 40°C から 25°C に低下すると、40°C から 50°C に上昇したときに明瞭に収縮したひずみゲージ(StrainGauge2)はここでは膨張を示した。多くのひずみゲージと周変位計では大きな変化を示さず、温度との相関は不明瞭であった。温度が再び 25°C から 40°C に上昇すると、40°C から 50°C に上昇したときに収縮したひずみゲージ(StrainGauge2)は、わずかな収縮傾向を示した。

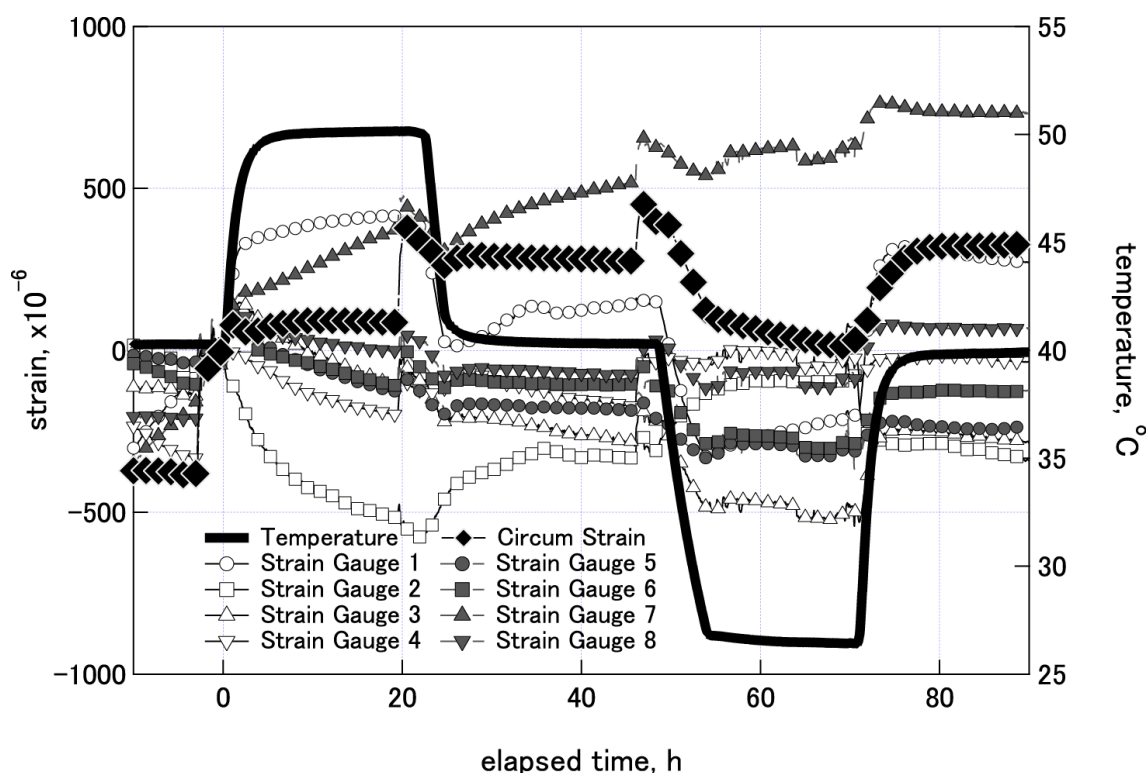


Fig.4.4 Response of strain to temperature change in the case of liquid/supercritical CO₂ as pore fluid.

石炭の CO₂ 吸着量は温度に負の相関を示し、CO₂ 吸着量は石炭の膨潤を支配する。したがって、温度が上昇すると CO₂ 吸着量減少にともなう収縮と石炭マトリクス熱膨張が干渉し、温度が低下すると CO₂ 吸着量増加にともなう膨張と熱収縮が干渉すると考えられる。

間隙流体が N₂ における温度変化試験ではすべてのひずみゲージおよび周変位計によるひずみ変化の傾向が揃ったのに対し、間隙流体が CO₂ における温度変化試験ではひずみ変化の傾向が揃わなかった。石炭の供試体表面には割れ目が多数存在し、ひずみゲージを貼付する際に、これを完全に避けて貼付することができない。ひずみゲージはエポキシ系の接着剤で貼付されている。割れ目が卓越している領域で、この割れ目に接着剤が充填され、その上にひずみゲージが貼付されている部分では、間隙流体が CO₂ の場合、温度が上昇したときに本来石炭マトリクスの CO₂ 吸着量の減少による収縮と熱膨張が干渉するところが、接着剤の熱膨張の傾向に支配され、ひずみが増加することなどが考えられる。

Fig.4.5 において、左は間隙流体が N₂ の場合、右は間隙流体が CO₂ の場合で、下軸に記した温度変化を与えたときのひずみの変化量を縦軸にプロットした。ひずみの変化量は、温度変更開始から 15 時間後の 8 枚のひずみゲージと周変位計で測定されたもので、さらに 8 枚のひずみゲージの平均を付記している。

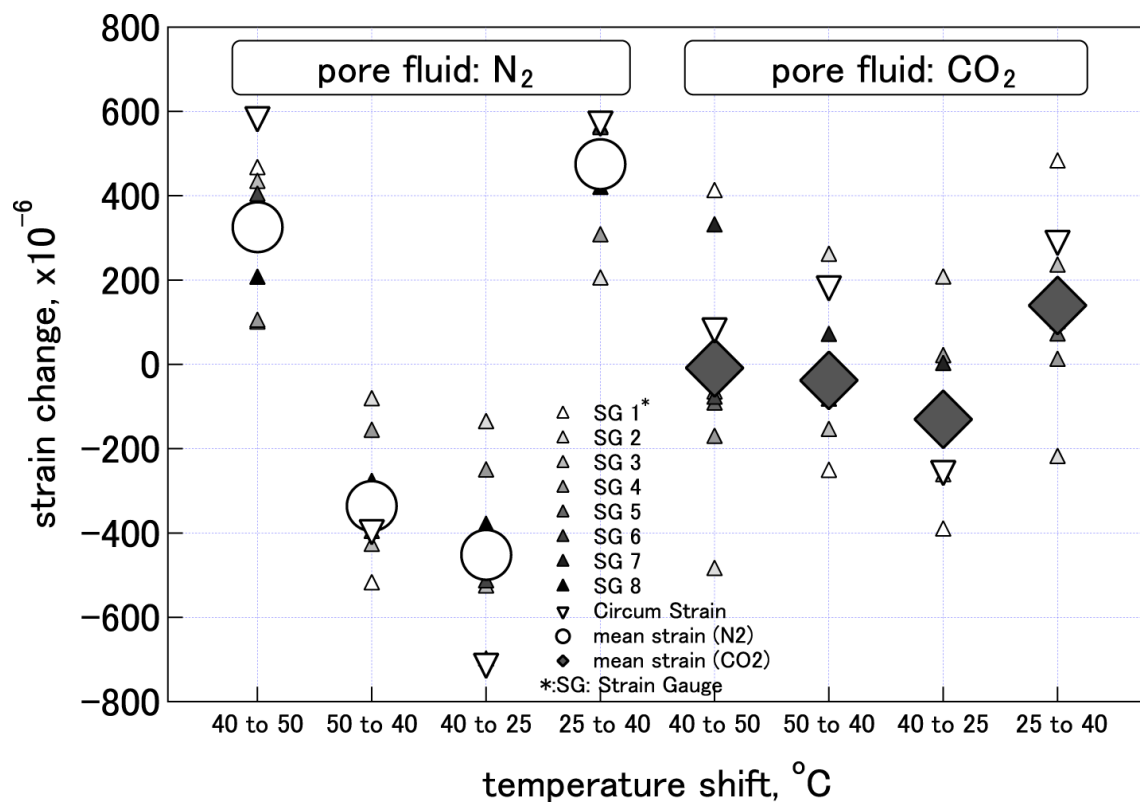


Fig.4.5 Effect of differences in pore fluid on the response of strain to temperature change.

Fig.4.6 において 8 枚のひずみゲージの平均を温度変化を横軸にとって整理した。これより熱膨張率は、間隙流体が N₂ の場合に $31.6 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$, CO₂ の場合に $6.7 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ となった。ただし上述のようにひずみゲージの挙動が接着剤の影響を受けている可能性があるので注意されたい。

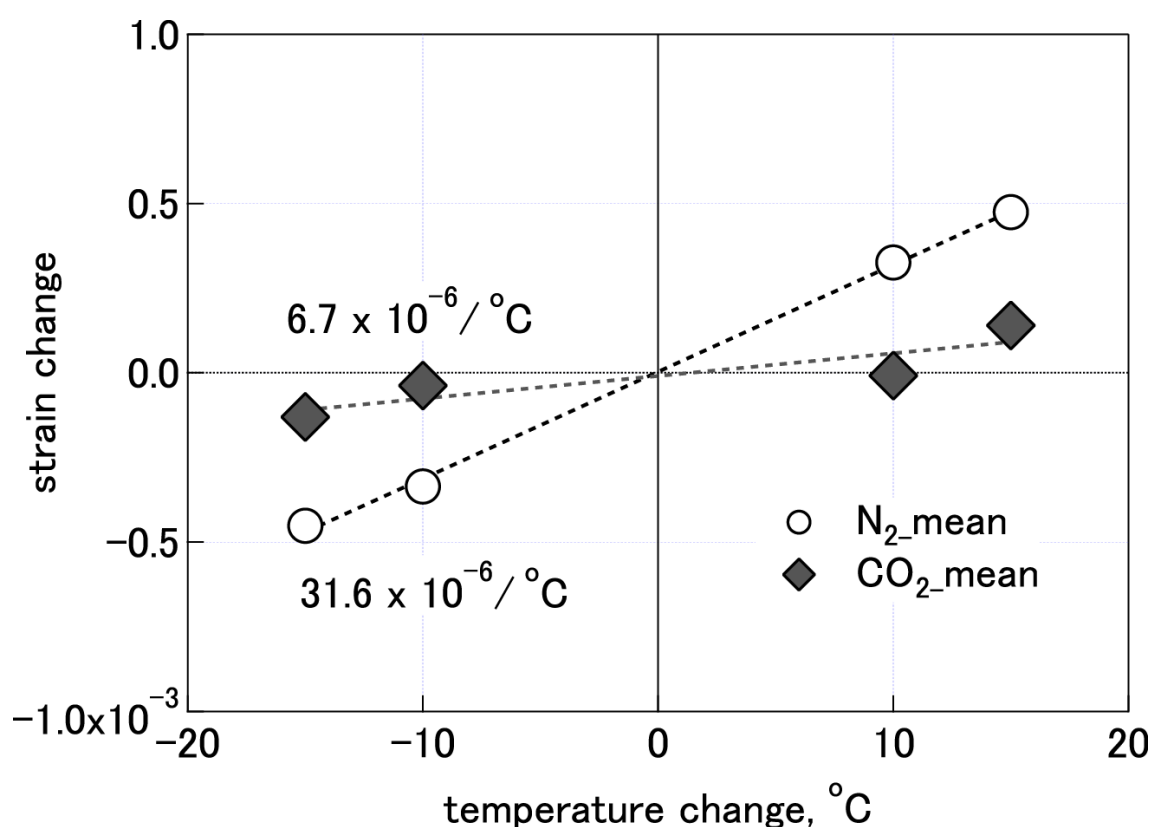


Fig.4.6 Relationship between strain change and temperature change.

Fig.4.7 に、浸透試験におけるポンプ流量の変化を示す。浸透試験では、注入側と排出側の差圧を 0.2MPa として流体を透過させて流量が平衡に達するのを確認した。間隙流体が N₂ の場合、40°C から 50°C に温度が上昇すると、浸透試験における流量は減少し、温度が低下すると流量は増加する。本試験は応力拘束条件ではあるが、熱膨張により局所的にクリークの閉鎖が発生し、流量の変化に寄与している可能性が考えられる。一方、間隙流体が CO₂ の場合、まず N₂ に比較して流量が低く、また温度変化に対して鈍感である。ここでも、熱膨張および収縮と CO₂ 吸着量の温度依存の関係が相殺されていることが考えられる。

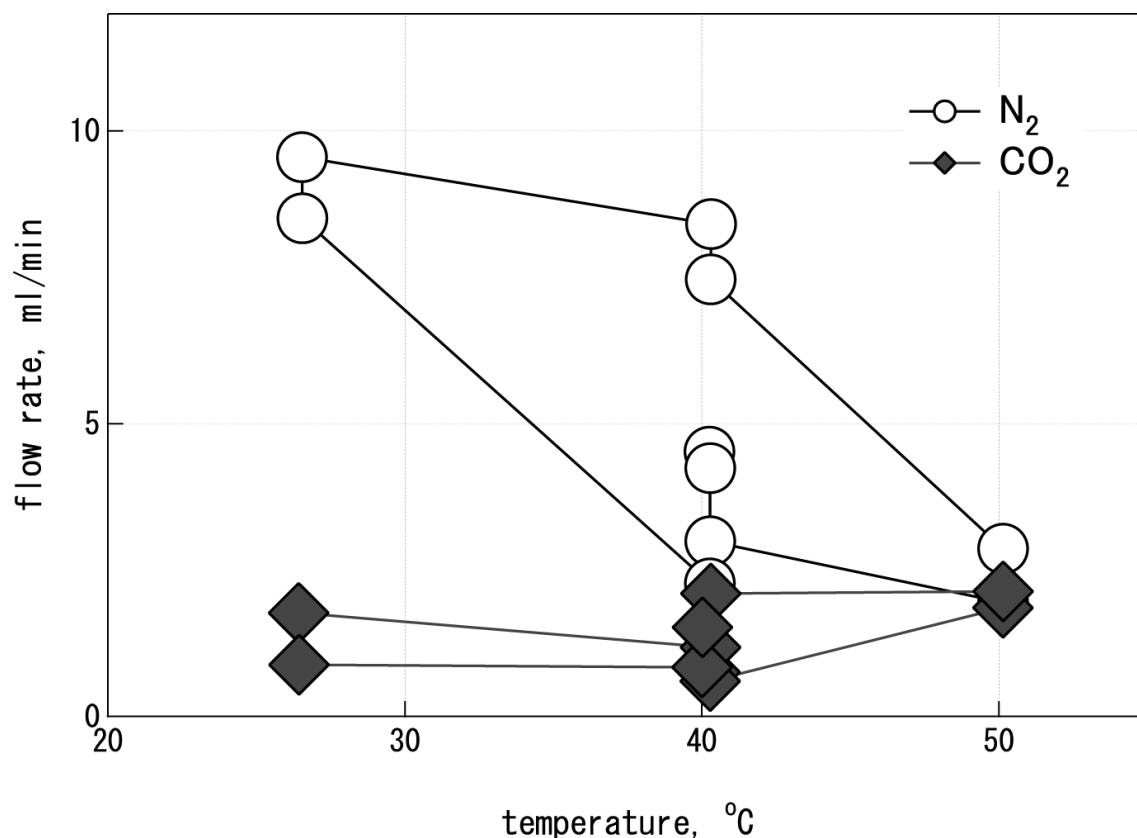


Fig.4.7 Changes of flow rates of pump in permeability test.

応力拘束条件における石炭の温度変化に対する挙動を要約すると、本章において、本研究では、オーストラリア産の石炭を供試体として、温度条件を 25, 40 および 50°Cとして、石炭への超臨界 CO₂ および N₂ の繰り返し注入試験を実施した。その結果、間隙流体が N₂ において温度変化とひずみに正の相関が認められたが、間隙流体が超臨界 CO₂ において相関は認められなかった。後者では、温度上昇にともなう熱膨張と超臨界 CO₂ の吸着量低下による収縮が相殺されている可能性がある。また、間隙流体が N₂ において温度変化と浸透試験のポンプ流量に負の相関が認められたが、間隙流体が超臨界 CO₂ において相関は認められなかった。封圧の増加にともない、ポンプ流量が低下するが、封圧 16MPa でポンプ流量はほぼゼロとなった。

4.3 試験Ⅱ：ひずみ拘束条件における温度変化に伴う挙動

試験Ⅱでは、供試体の上下端面からそれぞれ 25mm 離れた位置に、共振周波数が 500kHz の圧電素子を対向させて貼付し、主炭理に直交するパスの V_p を測定した (Fig.4.8)。供試体の軸方向の中央部に周変位計を取り付け、周変位計の出力を封圧発生装置にフィードバックし、周変位が一定となるように封圧を制御することでひずみ拘束条件を実現した。

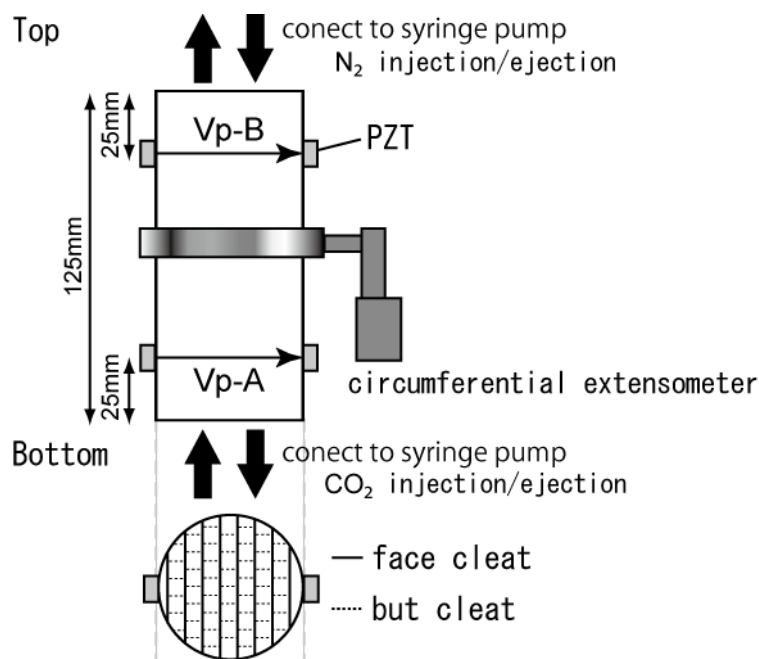


Fig.4.8 Layout of coal cleats and sensor arrangement on the specimen.

試験において計測される項目は、温度、封圧、周変位（以下、周変位を供試体周長で除して周ひずみで表す）、供試体上部および下部の間隙圧（便宜上、以下それぞれ PoreOUT および PoreIN と表す）、供試体上部および下部にそれぞれ接続されたシリンジポンプの流量および圧力、上部および下部の主炭理に直交するパスの V_p （それぞれ V_p-A および V_p-B と表す）である。この他、数枚のひずみゲージを貼付して局所ひずみも計測したが、試験Ⅱでひずみ拘束条件が満足されるのは供試体の軸方向の中央部だけなので、本報告では触れない。

供試体下部から CO_2 を注入するとやがて供試体上部に CO_2 がブレイクスルーし、同様に供試体上部から N_2 を注入すると供試体下部に N_2 がブレイクスルーするので、排出される流体は CO_2 と N_2 が混入してシリンジポンプに導入される。後述の試験において上部から N_2 を再注入したり下部から CO_2 を再注入する際は、シリンジポンプの流体をそれぞれ純粋な N_2 または CO_2 に交換してから実施した。

試験Ⅱにおける全過程の封圧、周変位計で計測された周ひずみおよび温度の経時変化を Fig.4.9 に示し、A から G までの 7 ステージの試験内容と補助的なステージに関しては、結果の概要について触れる。

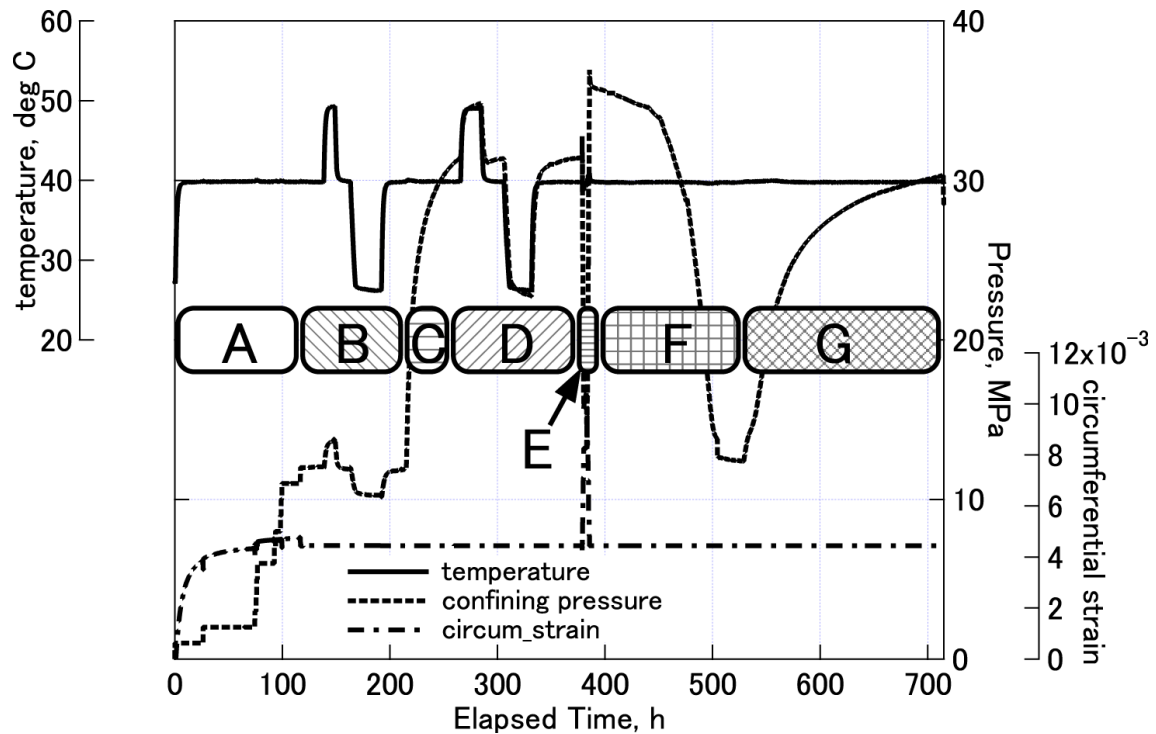


Fig.4.9 Results of confining pressure, circumferential strain and temperature observed in the experiment II.

A: 応力拘束条件, すなわち封圧が一定に制御された状態で, 試験の初期状態を設定した。供試体に過剰な有効封圧を履歴させないように注意した。

B: ひずみ拘束条件に変更し, 間隙流体が N_2 における温度変化試験(試験結果は後述)を実施した。以降のステップではひずみ拘束条件で試験を実施した。

C: 超臨界 CO_2 を注入した。これに伴い封圧は 30 MPa を超えるまで増加した。

D: 間隙流体が CO_2 における温度変化試験(試験結果は後述)を実施した。

E: 周ひずみの制御値を増減させ, 封圧の応答を調べた。周ひずみの制御値は試験 I における CO_2 吸着に伴い発生した膨潤ひずみを参考にした。

F: N_2 を再注入した。浸透率が低くて流動が発生しない際は ΔP を段階的に増加した。封圧は初期状態の 12MPa 近くまで減少した。

G: 封圧を変化させて変形特性を調査した。有効封圧とひずみは負の相関を示すことを確認した。

ステージ B および D では間隙流体が N_2 および CO_2 で温度を変化させている。ステージ B, C, D, F および G では, 温度が変化したり異なる流体が注入されても周ひずみが変わらないように封圧が制御され, ひずみ拘束条件となる。

Fig.4.10 に周変位計で観測された供試体の周方向の変形から求めた周ひずみ変化と封圧の関係を示す。これから計算した体積弾性率は 1400MPa を示した。

G: 超臨界 CO_2 を再注入した。温度 40°C, ひずみ拘束条件を維持し, 下部の間隙流体および間隙

圧を CO₂ および 10.1MPa に変更する。上部の間隙流体および間隙圧は N₂ および 10.0MPa とし、0.1MPa の ΔP で CO₂ の注入および N₂ の排出が発生する。

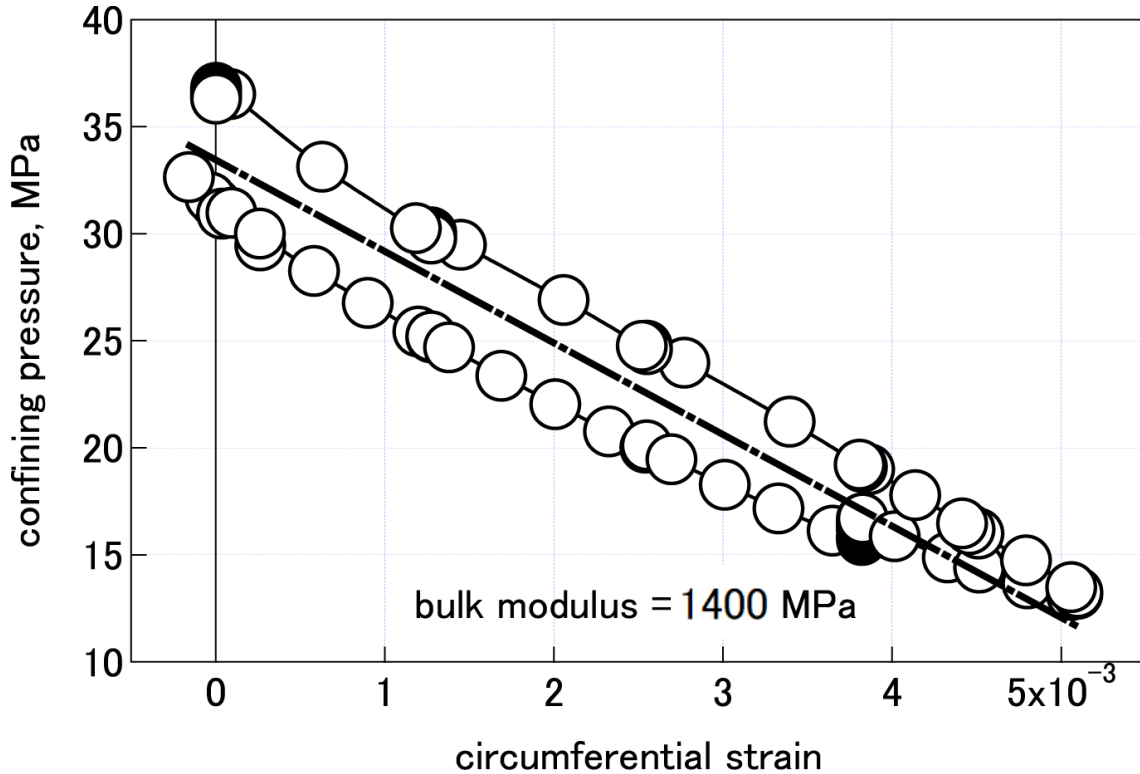


Fig.4.10 Relationship between circumferential strain changes and confining pressure.

下記に、試験結果を記す。

ステージ B: 間隙流体が N₂ でひずみ拘束条件におかれた供試体の温度変化に対する封圧、周ひずみ、 V_p および間隙圧の挙動を Fig.4.11 に示す。温度パターン 40→50→40→25→40℃に対し、封圧は 12.0→13.8→12.0→10.3→11.9MPa と、 V_p -A は 1.84→1.92→1.83→1.68→1.86km/s と、 V_p -B は 1.65→1.74→1.67→1.52→1.64km/s と変化した。周ひずみは一定値に維持されている。温度と封圧および V_p に明らかな正の相関が認められる。

ステージ C: 間隙流体が N₂ でひずみ拘束条件、40℃におかれた供試体に、0.1MPa の ΔP で CO₂ を注入した際の封圧、周ひずみ、 V_p および間隙圧の挙動を Fig.4.12 に示す。CO₂ の注入開始から 10 時間後までに、封圧は 11.9MPa から 24.5MPa に、 V_p -A は 1.84km/s から 2.09km/s に、 V_p -B は 1.65km/s から 1.98km/s にそれぞれ急激な増加を示した。その後、それぞれ緩やかな増加を示し、45 時間後には、封圧は 31.0MPa、 V_p -A は 2.15km/s、 V_p -B は 2.06km/s を示した。周ひずみは一定値に維持されている。ひずみ拘束条件における CO₂ 注入に伴う封圧の増分約 20MPa は、石炭の CO₂ 吸着による膨潤圧に等価であると考えられる。

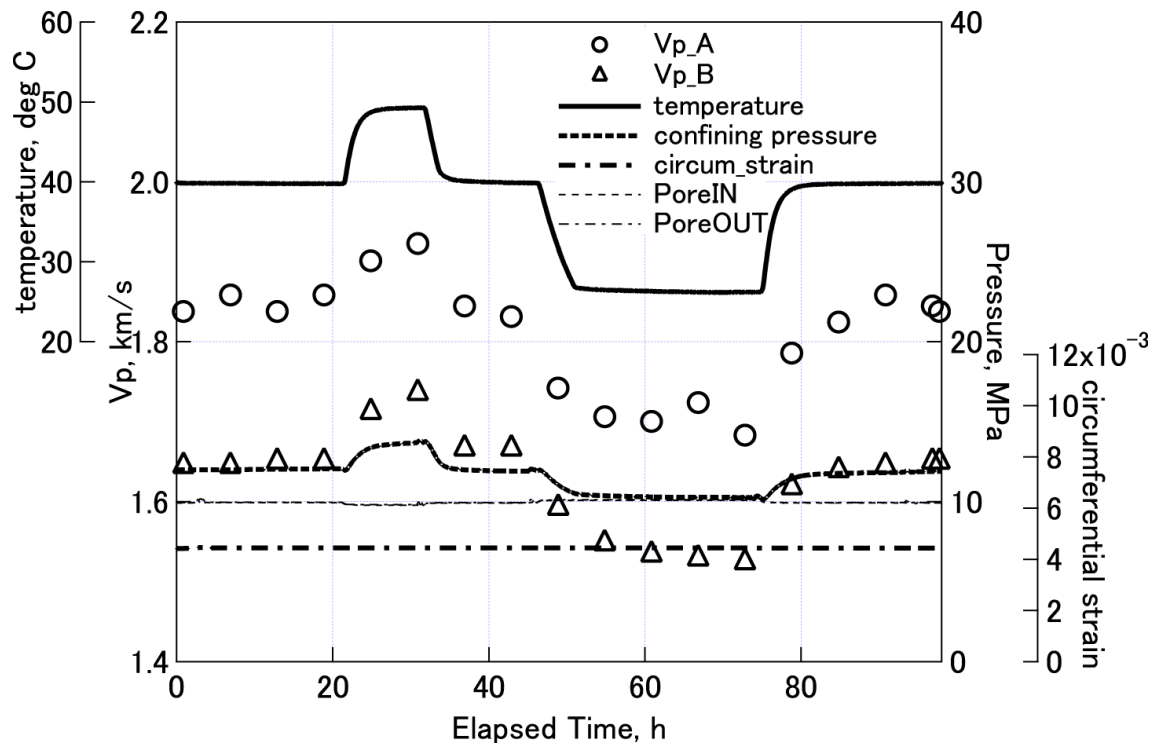


Fig.4.11 Stage B: behaviors of confining pressure, circumferential strain, V_p and pore pressure to respond to temperature change in the case of N_2 as pore fluid.

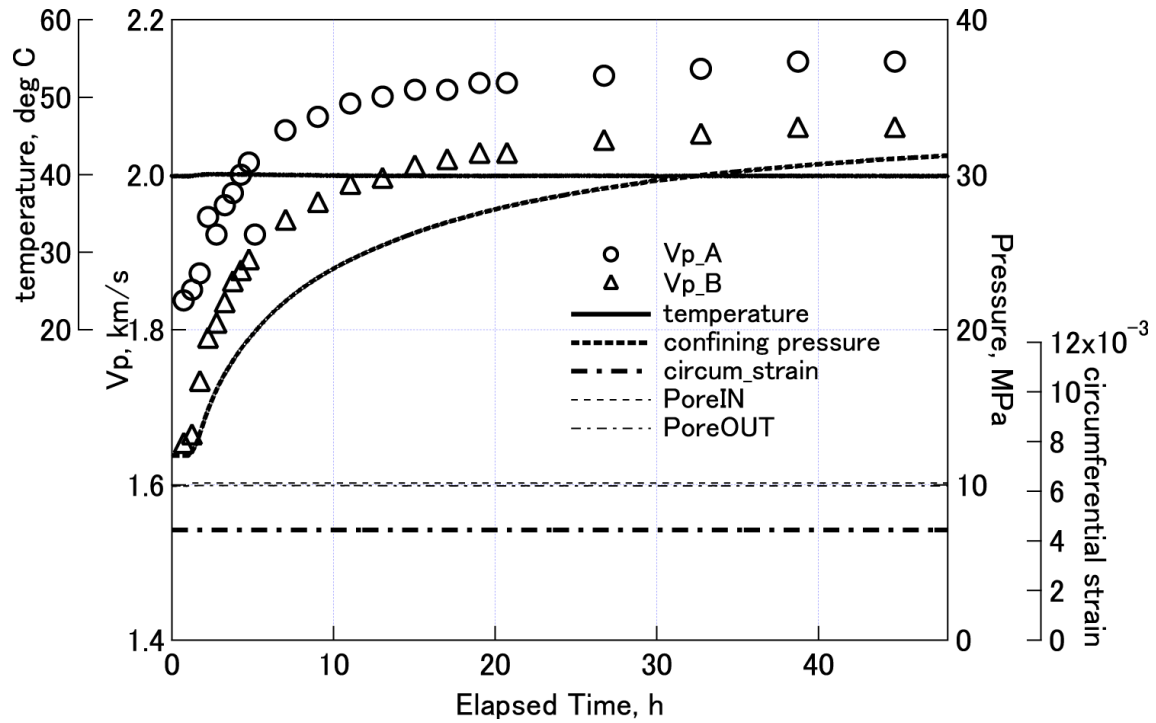


Fig.4.12 Stage C: behaviors of confining pressure, circumferential strain, V_p and pore pressure to respond to CO_2 injection in the case of N_2 as pore fluid.

ステージ D: 間隙流体が CO₂ でひずみ拘束条件におかれた供試体の温度変化に対する封圧, 周ひずみ, V_p および間隙圧の挙動を Fig.4.13 に示す。温度パターン 40→50→40→25→40℃に対し, 封圧は 31.0→34.8→31.3→22.9→31.2MPa と, V_p -A は 2.15→2.15→2.16→2.16→2.15km/s と, V_p -B は 2.06→2.07→2.08→2.05→2.07km/s と変化した。周ひずみは一定値に維持されている。温度と封圧に明らかな正の相関が認められるのに対し, 温度と V_p に相関は認められない。

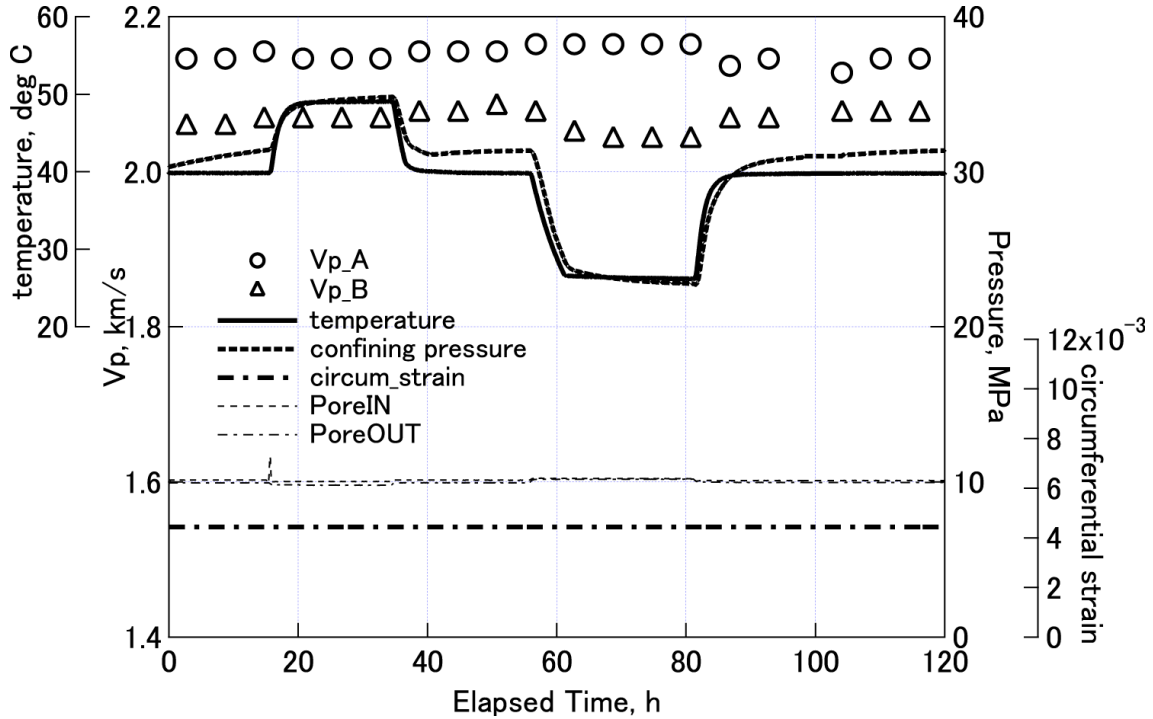


Fig.4.13 Stage D: behaviors of confining pressure, circumferential strain, V_p and pore pressure to respond to temperature change in the case of CO₂ as pore fluid.

ステージ E: 間隙流体が CO₂ で周ひずみの制御値を増減させた際の封圧, 周ひずみ, V_p および間隙圧の挙動を Fig.4.14 に示す。周ひずみを 0.44%から 0.95%まで段階的に約 0.5%増加させ再び 0.44%に減少させたのに対し, 封圧は 31.4MPa から 13.2MPa に減少した後 36.5MPa まで増加し, V_p -A は 2.15km/s から 1.95km/s に減少した後 2.16km/s まで増加し, V_p -B は 2.07km/s から 1.84km/s に減少した後 2.09km/s まで増加した。

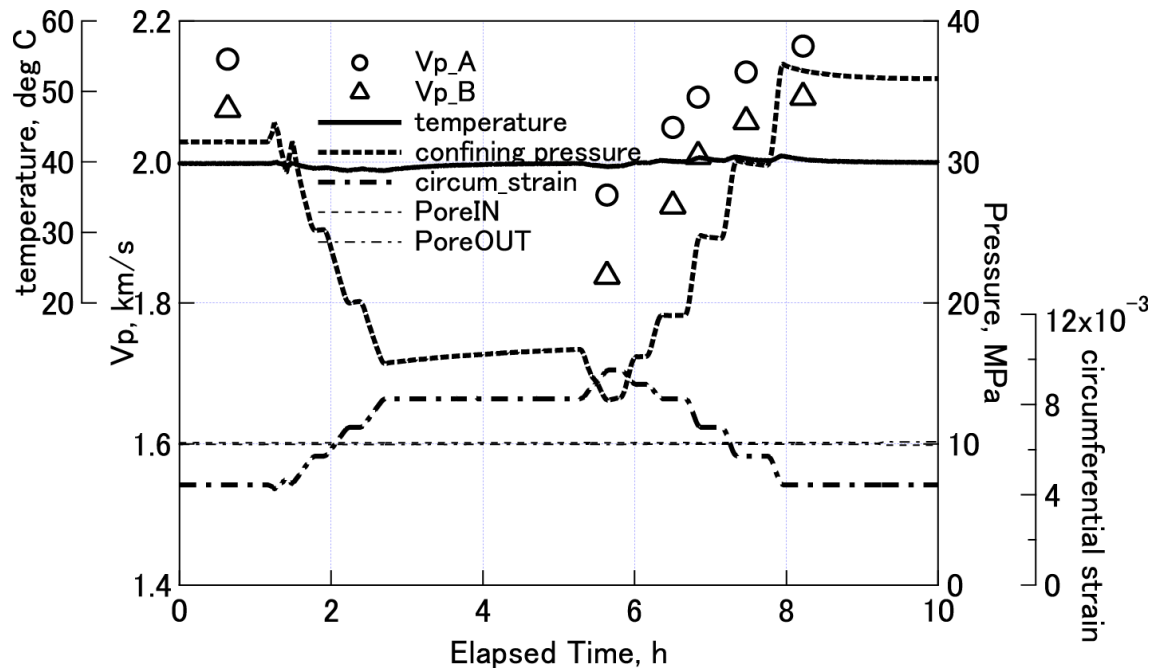


Fig.4.14 Stage E: behavior of confining pressure, circumferential strain, V_p and pore pressure to respond to the change in control of circumferential strain.

ステージ F:間隙流体が CO_2 でひずみ拘束条件, 40°C におかれた供試体に, 0.1MPa 以上の ΔP で N_2 を再注入した際の封圧, 周ひずみ, V_p および間隙圧の挙動を Fig.4.15 に示す。 N_2 の再注入開始から約 50 時間後までに ΔP は段階的に 0.4MPa まで増加させたが, 封圧および V_p の変化は小さい。 ΔP を 1.0MPa まで増加すると封圧は 34.0MPa から 29.0MPa に減少した。さらに ΔP を 2.0MPa に増加すると, 封圧は 13.9MPa まで, $V_p\text{-A}$ は 2.14km/s から 1.91km/s に, $V_p\text{-B}$ は 2.07km/s から 1.77km/s にそれぞれ急激な減少を示した。

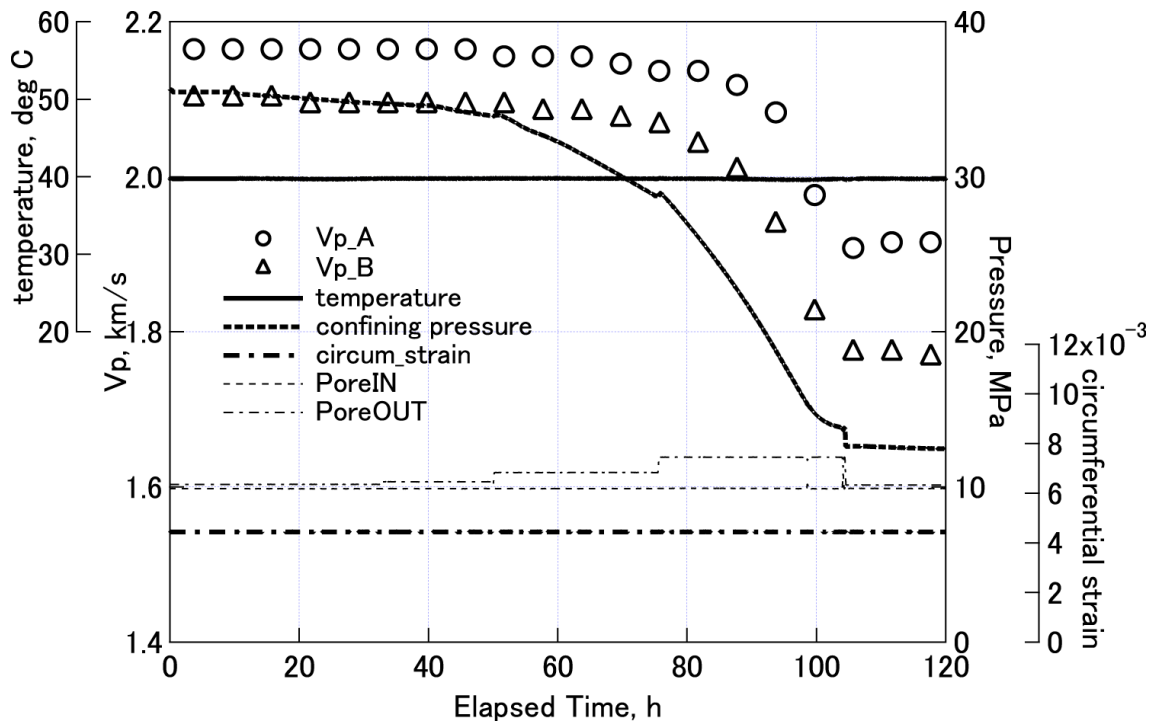


Fig.4.15 Stage F: behaviors of confining pressure, circumferential strain, V_p and the pore pressure to respond to N_2 re-injection with 0.1MPa or more in ΔP in the case of CO_2 as pore fluid, strain constraint condition and 40 °C in temperature.

ステージ G: 間隙流体が N_2 でひずみ拘束条件, 40°Cにおかれた供試体に, 0.1MPa の ΔP で CO_2 を再注入した際の封圧, 周ひずみ, V_p および間隙圧の挙動を Fig.4.16 に示す。 CO_2 の再注入開始から約 180 時間後までに, 封圧は 12.4MPa から 30.2MPa に, V_p -A は 1.91km/s から 2.12km/s に, V_p -B は 1.77km/s から 2.07km/s にそれぞれ増加傾向を示した。

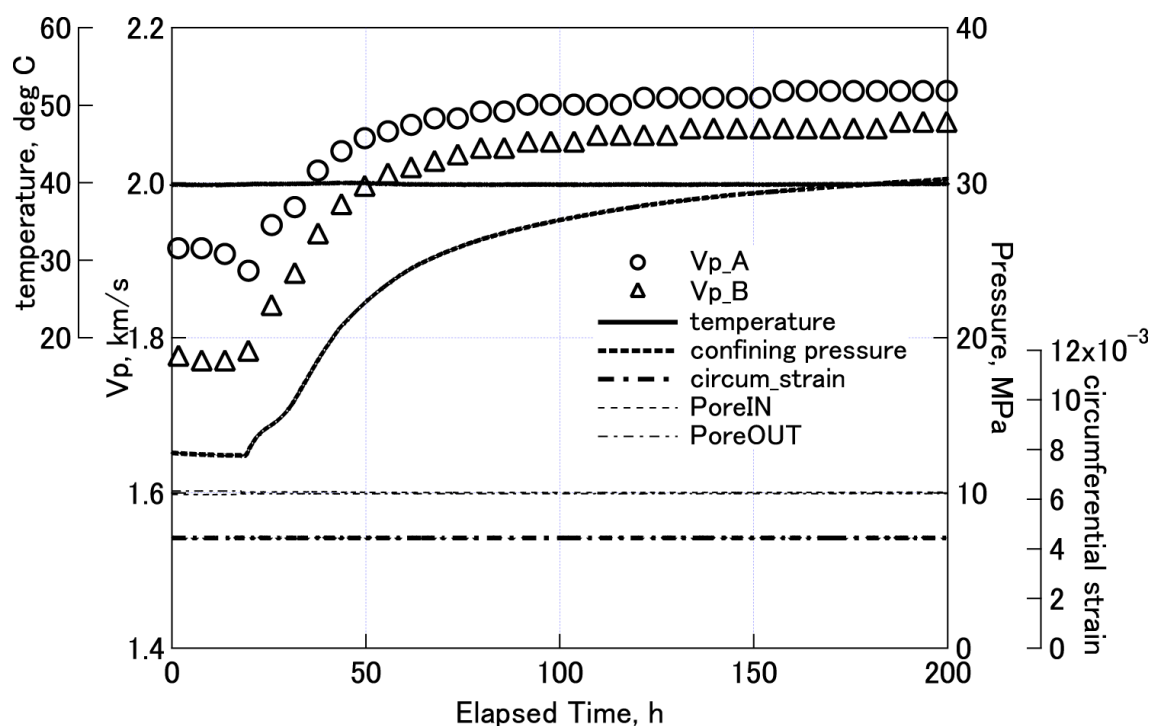


Fig.4.16 Stage G: behaviors of confining pressure, circumferential strain, V_p and the pore pressure to respond to CO_2 re injection with 0.1MPa or more in ΔP in the case of N_2 as pore fluid, strain constraint condition and 40°C in temperature.

4.4 本章のまとめ

4.4.1 ひずみ拘束条件における温度変化に対する封圧および V_p の応答

ステージ B および D で得られた結果から、温度と封圧の関係を Fig.4.17 に示す。間隙流体が CO_2 および N_2 のどちらの場合も温度と封圧は正の相関を示すが、 CO_2 の相関は N_2 より高い。間隙を CO_2 および N_2 で飽和された石炭は温度上昇に伴い熱膨張しようとするが、ひずみ拘束条件では膨張を抑制するために拘束圧力すなわち封圧が増加する。間隙流体が CO_2 における温度と封圧の相関が N_2 における相関より高い理由として、前者の方が体積弾性率、熱膨張率が高いことなどが考えられるが、結論はさらなるデータの蓄積の後に委ねる。

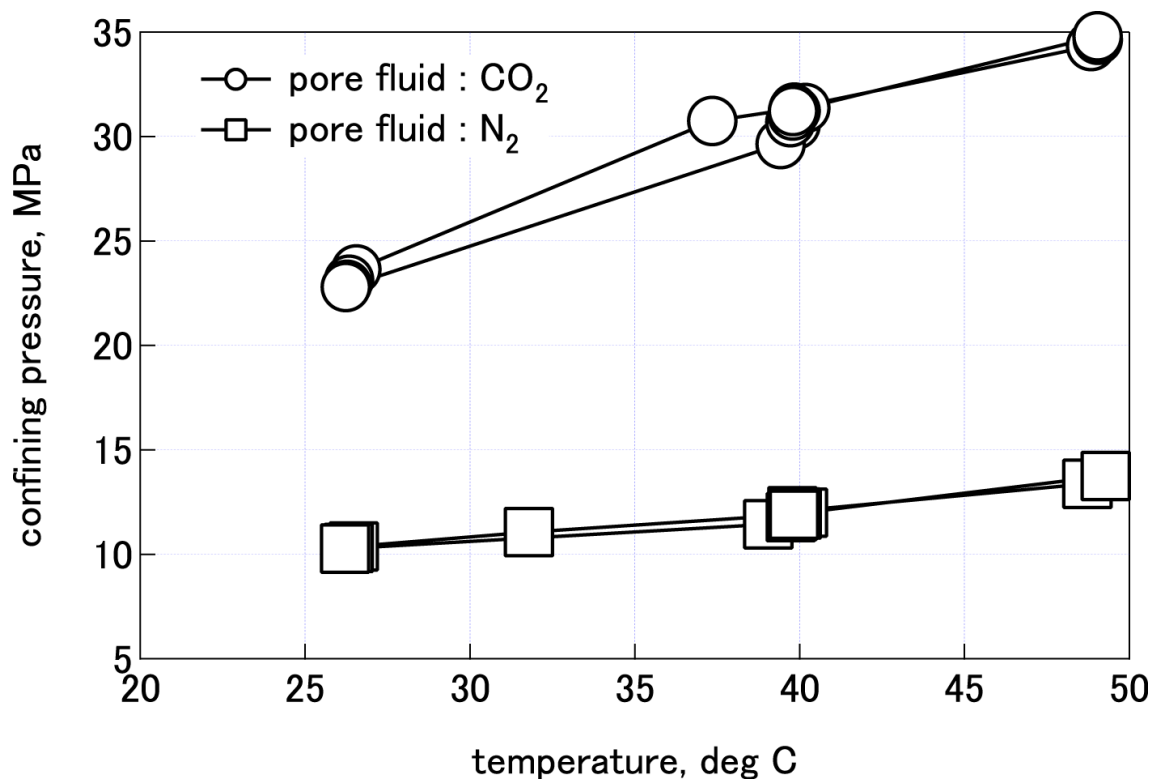


Fig.4.17 Relationship between temperature and confining pressure in stage B and D.

次に温度と V_p の関係を Fig.4.18 に示す。間隙流体が N_2 における温度と V_p は、明瞭な正の相関を示すのに対して、間隙流体が CO_2 において V_p は変化が見られない。封圧と V_p の関係を Fig.4.19 に示す。温度上昇に伴う封圧の増分は間隙流体が CO_2 の方が N_2 より大きいこと、一般に拘束圧(ここでは封圧)と V_p は正の相関を示すことを考えると、一見、説明が困難な結果である。ここでいくつかの要因が考えられる。まず CO_2 は $25^\circ C$ 約 $10 MPa$ の試験条件では液相を示すが、 40 および $50^\circ C$ では超臨界相となり、諸物性が大きく変化する可能性があること、すなわち CO_2 単体の V_p が温度変化に伴い大きく増減すると仮定すると、 CO_2 を間隙流体とする石炭供試体において、封圧が増加するにもかかわらず全体の V_p が変化しないことが考えられる。次に石炭の CO_2 吸着量は温度と負の相関にあるので、温度が上昇すると石炭マトリクスから CO_2 が脱着して収縮傾向を示し、熱膨張と相殺される可能性が考えられる。ただし実際に封圧が上昇したことから、供試体全体として温度上昇に伴い膨張傾向を示すと考えられる。

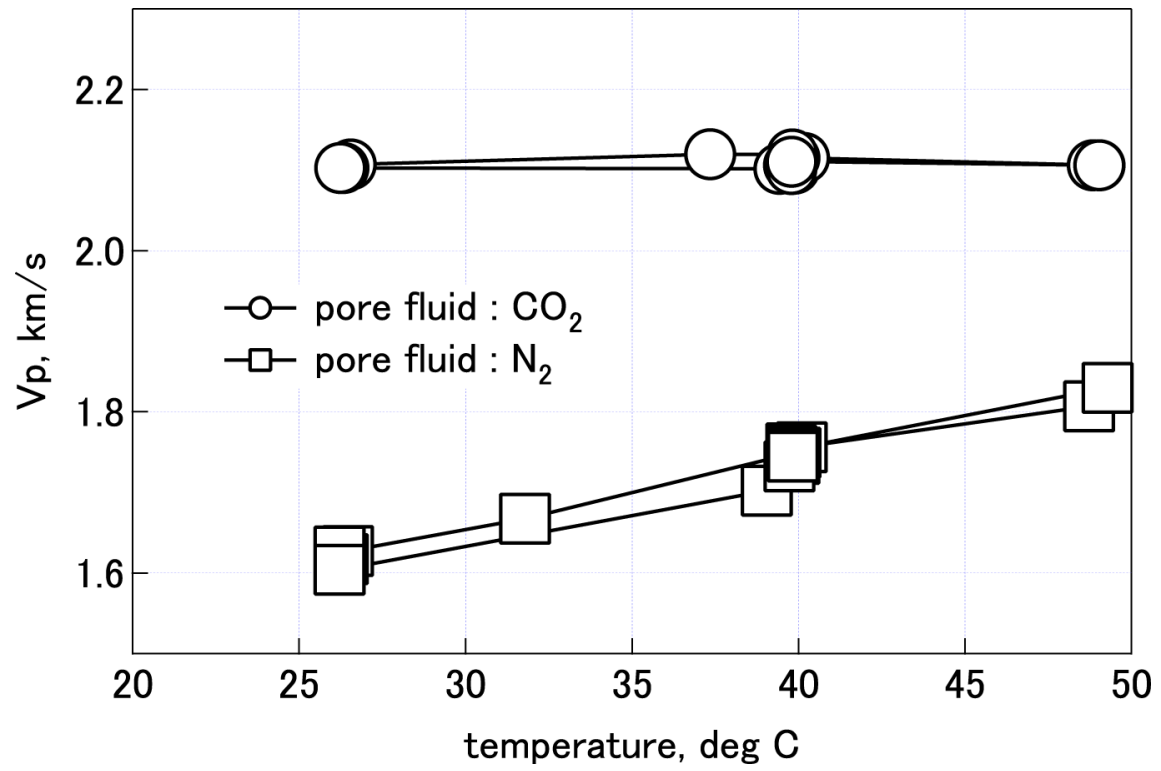


Fig.4.18 Relationship between temperature and V_p in stage B and D.

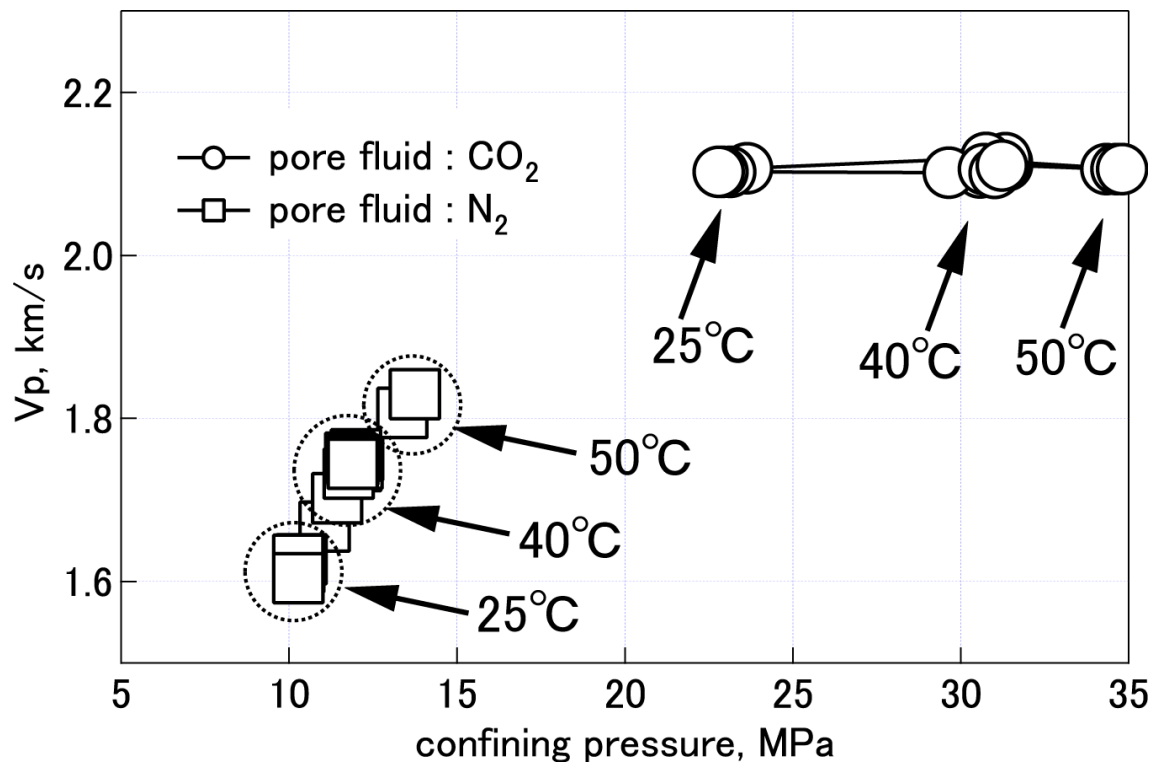


Fig.4.19 Relationship between confining pressure and V_p in stage B and D.

ステージ C, E, F および G における温度 40°C, 間隙圧 10MPa での封圧と V_p の関係を Fig.4.20 に示す。ここでは異なる間隙流体を注入したり周ひずみの制御値を変化させたりして封圧が変化し、これに対応して V_p が変化しているが、封圧と V_p は正の相関を示し再現性が高い。

同じ温度および間隙圧において石炭の V_p は封圧に強く支配され、間隙流体の物性の影響は比較的低いと考えられる。一方、温度が変化する場合には、間隙流体そのものの物性の変化と間隙流体と石炭の吸・脱着などの応答が V_p に影響を及ぼすため、間隙流体の違いにより挙動が異なると考えられる。

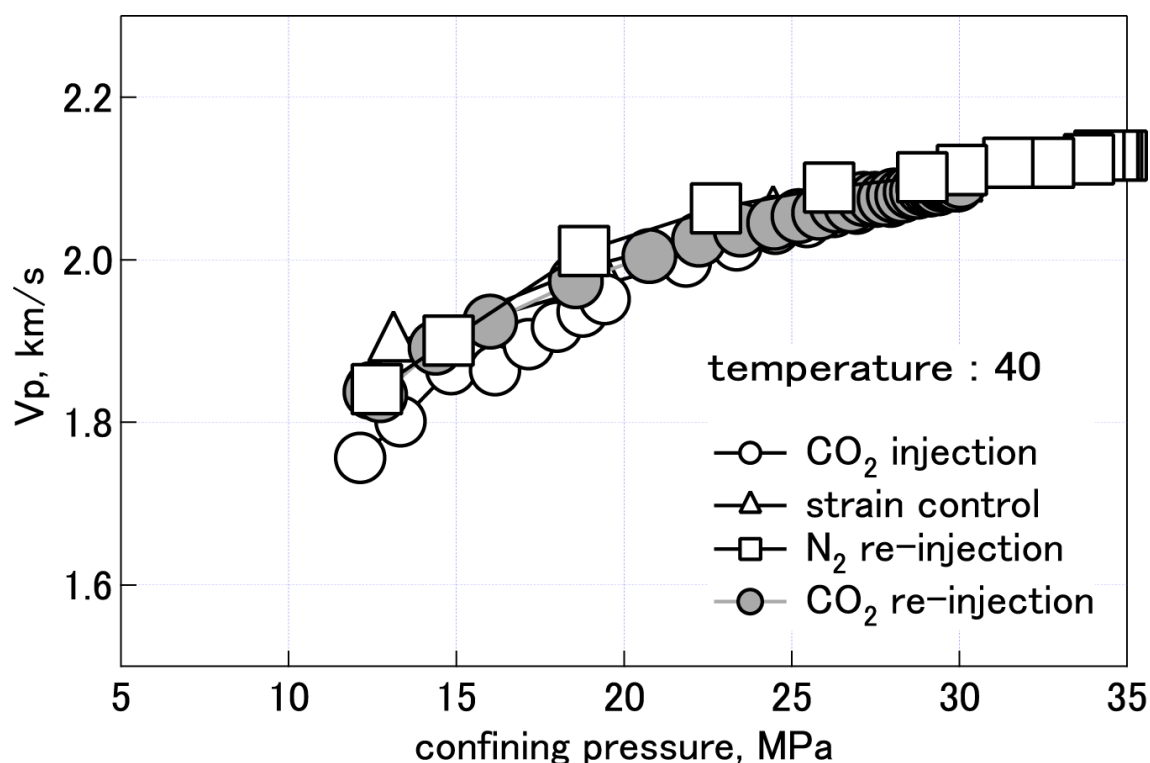


Fig.4.20 Relationship between confining pressure and V_p in stage C, E, F and G.

4.4.2 間隙流体が CO₂ の石炭の体積弾性率

ステージ E において、周ひずみの制御値を約 0.5% 増加させると封圧は 31.4MPa から 13.2MPa まで約 18MPa 減少した。ひずみをもとの値に戻すと封圧は 36.5MPa まで上昇して、もとの封圧を約 5MPa オーバーした。一旦封圧が低下したことに伴い浸透率が高くなり、CO₂ のマトリクスへの吸着・膨潤が進行したため、もとのひずみに戻すために大きな封圧が発生したことが考えられる。なお別途実施した試験において、12MPa の応力拘束条件で CO₂ 吸着に伴い発生した膨潤ひずみは約 0.7% で、オーダーとして調和的である。

これらのデータを直線近似して求めた間隙流体が CO₂ で温度 40℃、間隙圧 10MPa における石炭の体積弾性率は約 1400MPa となり、上述の試験 I で評価された体積弾性率 990MPa よりも大きい。試験 II では浸透率が低下して間隙流体が排出されず、石炭内部の間隙圧が高いままであった可能性が考えられる。

5 超臨界 CO₂ および N₂ 圧入に伴う膨潤と浸透率変化に関する考察

5.1 石炭の膨潤挙動における拘束条件の影響

原位置の ECBM において、圧入孔の周辺岩盤の拘束条件を考える。初期状態において、一般に岩盤は異なる三主応力が作用している。ここで岩盤は、応力拘束条件下にあるのか、ひずみ拘

束条件な下にあるのか。岩盤に大きなフラットジャッキを埋め込んで、油を注入して昇圧したとしよう。フラットジャッキの面に直交する方向に作用する原位置応力に達するまでフラットジャッキ内の油圧は上昇し、それ以上はいくら油を注入しても油圧は上昇せず、直交方向の応力と油圧は平衡を維持する。そしてフラットジャッキはどんどん膨らむだけとなる。このとき直交方向の変位は増加するだろう。もし、ひずみ拘束条件であったとすると、フラットジャッキの面に直交する方向の原位置応力の大きさにかかわらず、油圧はどんどん上昇する。岩盤は変位しないので当然のこととなる。しかしこの条件を成立させるには、直交方向の変位を拘束するための、きわめて剛性の高い構造物が必要となる。たとえば結晶質岩のような剛性の高い岩石もあるので、ここで考えた剛性の高い構造はあり得る。しかし、水圧破碎においてブレイクダウン圧で岩盤を壊させた後は、シャットイン圧は破碎面に直交する応力と平衡するように、もともとは剛性の高い材料で構成されていても、最終的には応力拘束条件に帰着する。繰り返すと、面的な応力や変位の増減は、応力拘束条件下にある。次に、ECBMのように1つの孔からCO₂が圧入され、その周辺岩盤がどのような挙動を示すかを考える。孔の周囲にCO₂が注入されたリング状の領域が形成され、半径方向はフラットジャッキの場合と同様に岩盤応力を維持しながら変形が許容される。一方、リングの接線方向は、膨張しようとしてもアーチ状に競り持つことになるので、変形が許容されない。ひずみ拘束の要素が大きくなる。圧入孔から放射状に流動するCO₂に対して接線方向がひずみ拘束されると、石炭に吸着したCO₂は流路となるクリートを閉塞するばかりなので、浸透率はますます低下することになる。

室内で石炭供試体にCO₂を注入する試験において、一般的な封圧三軸試験では封圧を一定に制御しているので応力拘束条件に相当する。流体を円柱供試体の軸方向に流すとき、CO₂の吸着による径方向の膨張は封圧が一定の条件で許容される。したがってクリートの閉塞は顕著ではなく、浸透率の低下も大きくない。一方、本論で採用した周変位制御による三軸試験は一般的ではないが、ひずみ拘束条件を室内試験で再現するにはもっとも適した手法である。供試体の径方向の変形は許容されないので、石炭マトリクスがCO₂を吸着して膨張した変位に相当して、クリートを閉塞するので、浸透率の低下が著しくなる。

ECBMにおける浸透率の挙動は、ひずみ拘束条件の影響が無視できないので、室内試験で石炭の浸透率特性を把握する際にも、一般的な封圧三軸試験のみならず、周変位制御によるひずみ拘束条件における浸透率試験を併用する必要がある。

5.2 CO₂圧入による膨潤挙動を厚肉円筒の焼き嵌めに模擬した一考察

炭層に地表から掘削した半径 r_1 のボアホールにCO₂を圧入し、半径 r_2 の領域までCO₂が均等に浸透し、この領域は石炭のCO₂の吸着に伴い ε だけ膨潤する(Fig.5.1)。膨潤した領域を、内半径 r_1 、外半径 r_2 の厚肉円筒とみなす。円筒の外周から半径方向応力 σ_2 を受けるとき、半径 r_2 における周方向応力を σ_θ とすると、圧縮を正として、

$$\sigma_\theta = \sigma_2 \frac{r_2^2}{r_2^2 - r_1^2} \left(1 + \frac{r_1^2}{r_2^2} \right)$$

$$= \sigma_2 \frac{r_2^2 + r_1^2}{r_2^2 - r_1^2}$$

平面応力状態を仮定すると、周ひずみ ε_θ は

$$\begin{aligned}\varepsilon_\theta &= -\varepsilon + \frac{\sigma_\theta}{E} - \nu \frac{\sigma_2}{E} \\ &= -\varepsilon + \frac{1}{E} \left(\sigma_2 \frac{r_2^2 + r_1^2}{r_2^2 - r_1^2} - \nu \sigma_2 \right) \\ &= -\varepsilon + \frac{\sigma_2}{E} \left(\frac{r_2^2 + r_1^2}{r_2^2 - r_1^2} - \nu \right) \cdots (1)\end{aligned}$$

次に、内圧 σ_2 が作用する岩盤の r_2 において

$$\begin{aligned}\sigma_\theta &= -\sigma_2 \\ \varepsilon_\theta &= \frac{\sigma_\theta}{E} - \nu \frac{\sigma_2}{E} \\ &= -\frac{\sigma_2}{E} (1 + \nu) \cdots (2)\end{aligned}$$

(1) と(2)が等しいので、

$$\begin{aligned}\varepsilon &= \frac{\sigma_2}{E} \left\{ \left(\frac{r_2^2 + r_1^2}{r_2^2 - r_1^2} - \nu \right) + (1 + \nu) \right\} \\ &= \frac{\sigma_2}{E} \left(\frac{r_2^2 + r_1^2}{r_2^2 - r_1^2} + 1 \right) \\ &= \frac{\sigma_2}{E} \cdot \frac{2r_2^2}{r_2^2 - r_1^2} \\ \sigma_2 &= \varepsilon E \cdot \frac{r_2^2 - r_1^2}{2r_2^2}\end{aligned}$$

厚肉円筒の外周から半径方向応力 σ_2 を受けるとき、半径 r_1 における周方向応力 σ_θ は、

$$\begin{aligned}\sigma_\theta &= \sigma_2 \frac{r_2^2}{r_2^2 - r_1^2} \left(1 + \frac{r_1^2}{r_2^2} \right) \\ &= \sigma_2 \frac{2r_2^2}{r_2^2 - r_1^2} \\ &= \varepsilon E \cdots (3)\end{aligned}$$

となり, ボアホール半径 r_1 や CO_2 浸入領域すなわち厚肉円筒の外半径 r_2 に依存しない。

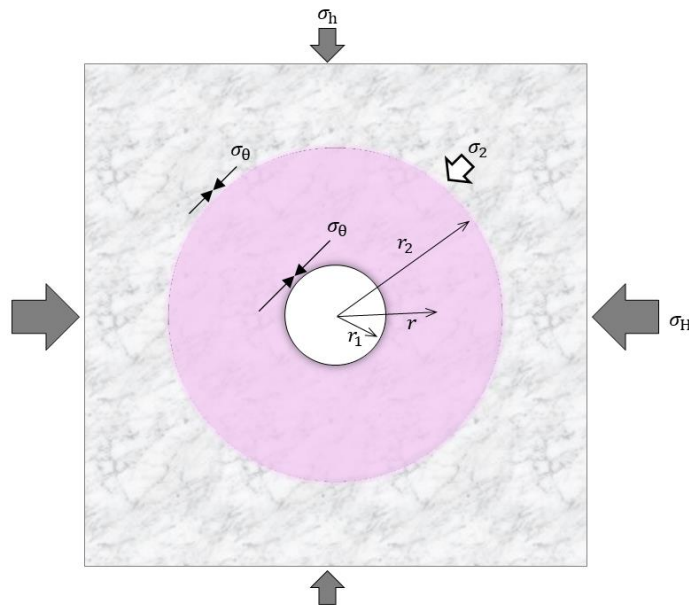


Fig.5.1 Schematic of combined thick cylinder.

室内試験で得られた体積弾性率は 1400MPa で, ポアソン比を 0.2 と仮定すると, 石炭のヤング率 E は 2520MPa となる。また, 封圧試験で CO_2 を注入した際の膨張ひずみ ε は, たとえば Fig. 2.14 から 0.7% 程度である。これを(3)式に代入してボアホール壁面の周方向応力 σ_θ を計算すると 18MPa となる。

炭層が水平な平板で, 面内の最大および最小主応力を σ_H および σ_h とすると, $\sigma_H = \sigma_h = 5\text{MPa}$ のケースを考えると, ボアホール壁面の周方向応力 σ_θ は 10MPa となる。 CO_2 による吸着/膨潤が作用すると重ね合わせの原理から, 28MPa の圧縮応力が作用することになり, 初期の 2.8 倍の圧縮応力となる。次に $\sigma_H = 10\text{MPa}$, $\sigma_h = 5\text{MPa}$ のケースを考えると, ボアホール壁面の周方向応力 σ_θ は最大が 25MPa で, 最小が 5MPa となる。 CO_2 による吸着/膨潤が作用すると, 最大が 43MPa で, 最小が 23MPa の圧縮応力が作用することになり, とくに最小の圧縮応力が作用する部分では初期の 5 倍弱の圧縮応力に変化する。一般的に最小圧縮応力が作用する部分は浸透率が高く, CO_2 の主たる浸透経路と想定されるので, この部分の応力が著しく増加することで, 全体の CO_2 の圧入量は著しく減少することが考えられる。

5.3 石炭の膨潤挙動における温度条件の影響

原位置の ECBM において, CO_2 の圧力は基本的には圧入する炭層の深度に依存するので, 人為的に制御できるのは CO_2 の温度のみである。

CO_2 では, 温度 31°C 以上, 圧力 7.3MPa 以上で超臨界状態を示す。温度の増加と密度および粘性の減少は相関がある。同じ圧入作業の手間を考えると, 温度が増加して密度が減少すると,

実質的に炭層に圧入して貯留できる CO_2 の総量(分子量)は減少するので、効率は低下する。一方、温度の増加に伴い CO_2 の粘性は減少するので、圧入圧を低く抑える可能性が高まり、圧入効率も高まる可能性がある。

さらに温度の増加に伴い石炭への CO_2 の吸着量は減少する傾向を示すので、吸着に伴う膨潤量も減少するが、温度増加に伴う熱膨張が生じるので、注意が必要となる。しかし上記のように粘性の減少も同時に発生するので、温度を高くした方が CO_2 の圧入量を効率的に維持できる可能性が高い。

5.4 膨潤に伴う浸透率低下を改善する一提案

われわれは夕張予備実験において、 CO_2 の炭層への圧入がきわめて難しい課題であることを認識した。 CO_2 圧入による炭層の膨潤に伴う浸透率の低下を改善する方法について、2 案を提案する。

圧入孔を円孔ではなく、スリット形状の孔にする方法である。実際の原位置でスリット形状の孔を作製することは困難なので、複数の円孔を直線上に配置することでこれを模擬する。スリット形状の孔では、スリットに直交する方向への開口が拘束されにくい。スリットに直交する方向の初期応力が作用しているものの、ひずみ拘束はされないので、クリークなどの割れ目は閉塞されにくい。スリットの配置は、最小主応力に直交する面に近い方が望ましい。

もう 1 案は、圧入する CO_2 の温度を高くする方法である。 CO_2 の温度を高くすることにより、圧入孔近傍では CO_2 の炭層への吸着量が減少し、熱膨張はあるものの粘性の低下により高い浸透率を維持できるので、圧入した CO_2 を圧入孔から遠方の領域まで流送することが可能となる。メタンの生産孔を遠方に設定することができるので、より広い領域に CO_2 を貯留して、その領域からメタンを回収できる可能性が高くなる。

6 結言

本論は、CCS の有力な手法の一つである CO_2 -ECBM において、火力発電所などの大規模発生源で生成された CO_2 を分離・回収し、地下深部の石炭層に圧入した際に生じる炭層の挙動を室内試験により明らかにすることを目標とした。夕張予備実験において、 CO_2 の圧入量は事前の予想を大きく下回った。その後 N_2 を圧入すると圧入性が改善されたことから、 CO_2 の低い圧入量は炭層と CO_2 の反応によるものと考えられた。 CO_2 の炭層固定では、 CO_2 を吸着した石炭は膨潤し、浸透率が低下する。その際、 CO_2 の相変化と粘性や圧縮率などの物理特性、 CO_2 を圧入する地下の炭層の拘束条件および CO_2 吸着特性と温度の関係などに依存する。また注入された流体の流路となる連続性が高い主炭理 (face cleat) およびこれに直交する従炭理 (but cleat) と呼ばれる石炭内部の割れ目系に着目し、吸着・膨潤および脱着・収縮を生じる石炭マトリクスによって炭理が開口および閉塞する特性を明らかにした。

得られた知見を以下にまとめる。

変形が許される応力拘束条件におかれた石炭供試体に液体または超臨界 CO_2 を注入し、膨潤特性および浸透率の変化を観測において、

- 炭理の性状はさまざまで、局所的にきわめて浸透率の高い領域があり、主炭理は連続性が高い。液体 CO_2 の一部は比較的短時間で排出側に到達するが、残りは石炭内部を徐々に進行する。
- マイクロポアを有するブロック状のマトリクスが、平板き裂状の炭理に囲まれた構造の石炭のモデルにおいて、き裂開口幅がマイクロポアの直径と同程度でも、炭理の浸透率はマトリクスより大きいので、炭理を流れる液体 CO_2 の速度はマトリクスを流れる液体 CO_2 の速度より大きい。また、マトリクスの圧入側と排出側の差圧が水と液体/超臨界 CO_2 のキャピラリー圧より低ければ、液体/超臨界 CO_2 はマトリクス内部を流れないので、低い差圧では CO_2 は炭理のみを流動しマトリクス内部の流動が生じていないので、全体の浸透率は低い値を示す。
- N_2 飽和状態の石炭に超臨界 CO_2 を圧入すると、きわめて短い反応時間で N_2 と超臨界 CO_2 の置換が進行して膨張するのに対し、その後、 N_2 の圧入では収縮するのに長い時間を要する。これは、マトリクスと CO_2 の反応が強く、 N_2 と CO_2 では吸着・脱着速度が違うことと、 N_2 の圧入では主たる流路が炭理となり、 CO_2 がすでに浸入しているマトリクス内部の孔隙に N_2 が浸透しづらいことによる。

タ張予備実験などで観察された CO_2 炭層固定における圧入量の大きな変化が拘束条件の違いに起因する可能性を考慮し、インタクナ石炭供試体を用いて N_2 および CO_2 を応力拘束およびひずみ拘束条件下で注入する室内試験において、

- 石炭の V_p は炭理の開閉に依存するので、間隙流体の種類に変化がなければ、有効封圧と正の相関を示し、言い換えれば周変位と負の相関を示す。石炭に超臨界 CO_2 または N_2 が注入された場合は、それぞれ、マトリクスの膨潤または収縮が発生するが、このとき応力拘束条件ではマトリクスの膨張または収縮に関わらず炭理の開閉は低調であり、 V_p の変化も顕著ではない。しかしひずみ拘束条件ではマトリクスの膨潤または収縮の変形を相殺するように炭理の開閉が発生するので、 V_p の変化は顕著となり、拘束条件の影響はきわめて大きい。
- 石炭はマトリクスと平板き裂の炭理で構成されるが、有効封圧が比較的低い領域と高い領域で区別すると、前者では有効封圧の増加に伴いマトリクスの体積圧縮と炭理の閉塞が同時に進行するのに対し、後者ではすでに多くの炭理が閉塞しているので有効封圧の増加に伴いマトリクスの体積圧縮のみが進行する。後者では、流路となる炭理がほとんど閉塞しているので、浸透率は著しく低い。
- 有効封圧が浸透率を支配するのではなく、有効封圧の変化に伴う炭理の開閉が浸透率を支配する。
- ひずみ拘束条件で石炭に超臨界 CO_2 を注入すると、まず CO_2 は炭理に浸入し、次にマイ

クロポアに吸着されてマトリクスは膨潤する。ひずみ拘束条件では、マトリクスの膨潤を相殺するために炭理が閉鎖され、流動が間歇的となりその後停止する。流動が間歇的になってから以降は V_p の増加はわずかで、ほぼ完全に炭理は閉塞したものと考えられる。

- ひずみ拘束条件で超臨界 CO_2 が注入された石炭に N_2 を注入すると、炭理が閉塞しているのですぐに流動は発生せず、徐々に N_2 が浸透して CO_2 と N_2 が置換し、マトリクスが収縮すると炭理が開口して、浸透率は加速的に増加する。しかし CO_2 の石炭への吸着は N_2 より強いので完全に CO_2 は脱着せず、マイクロポアには CO_2 が残存すると考えられる。
- ひずみ拘束条件で超臨界 CO_2 を注入すると数分後には流動が停止したのに対し、応力拘束条件では流動が継続し、流量の減少や流動の停止は起こらなかった。夕張予備実験において CO_2 圧入量が徐々に低下したことは、原位置の拘束条件が応力拘束だけではなく、ひずみ拘束の要素が含まれることを示唆する。

石炭の CO_2 吸着量と温度は負の相関を示し、石炭の温度を上げると吸着可能な CO_2 の量が減少する一方、温度上昇に伴う熱膨張はこれとは逆トレンドとなる。そこで、 CO_2 を吸着した石炭の温度変化に伴う挙動に関する検討において、

- ひずみ拘束条件において CO_2 および N_2 で飽和された石炭が温度上昇に伴い熱膨張するとき、膨張を抑制するために封圧が増加するが、 CO_2 では N_2 より浸透率が低く間隙圧が下がりにくいので封圧の増加が顕著となる。
- また、間隙流体が N_2 における温度と V_p は熱膨張を相殺するために炭理が開閉するので明瞭な正の相関を示すが、 CO_2 では炭理がほぼ閉塞しているので V_p の変化は小さい。
- 温度が変化する場合には、間隙流体そのものの物性の変化と間隙流体と石炭の吸・脱着などの応答が V_p に影響を及ぼすため、間隙流体の違いにより挙動が異なると考えられる。
- 間隙流体が CO_2 で温度 40°C 、間隙圧 10MPa における石炭の体積弾性率は $990\sim 1400\text{MPa}$ となる。

謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの大学教授、准教授、関係機関の研究者・技術者から、ご指導、貴重なご意見、研究上のご支援を頂きました。また本研究に至る経歴・背景の中で、多くの方々からさまざまな知見と技術と論理を教えて頂きました。故・北海道大学石島洋二名誉教授、北海道大学藤井義明教授、北海道大学児玉淳一准教授、北海道大学菅原隆之技官、地球環境産業技術研究機構薛自求氏、電力中央研究所西本壮志氏、日本環境マネジメント株式会社宮澤大輔氏、株式会社ドーコン熊倉聡氏、産業技術総合研究所丸井敦尚氏、故・京都大学柳谷俊准教授、CSIRO Zhejun Pan 氏、石炭エネルギーセンター藤岡昌司氏、函館高等専門学校小玉齊明氏、エムティエスジャパン平山周三氏、産業技術総合研究所高橋学氏、三井住友建設高橋直樹氏、元サンコーコンサルタント佐々木勝司氏、サンコーコンサルタント吉岡正光氏、

現在所属する公益財団法人北海道科学技術総合振興センター幌延地圏環境研究所の宮古雅孝事務長、西澤久美子事務員、上野晃生主任研究員、玉澤聡研究員、玉村修司主任研究員、村上拓馬研究員、猪股英紀研究員、多田弘之技術員、佐々木ゆかり補助研究員、小野寺美穂補助研究員、そして誰よりも金子勝比古所長には重要な契機に多くのご支援を頂きました。みなさまに心より感謝いたします。また、わたくしのような至らない者をこれまでの長きに渡り支えてくれた妻市子、長女加奈女、次女納都女、両親および義理の両親、娘二人のお婿さんと孫優花里のおかげで、今日を迎えることができました。有り難うございました。

引用文献

Clarkson, C.R., Bustin, R.M., 1999. The effect of pore structure and gas pressure upon the transport properties of coal: a laboratory and modeling study. 2. Sorption rate modeling. *Fuel* 78, 1345–1362.

Fujii, T., Sugai, Y., Sasaki, K., 2007. Characteristics of adsorption, permeability and swelling of coal relating to liquid CO₂ sequestration into coal seams. *Journal of MMIJ* 123, 518–523 (in Japanese with English abstract).

Fujioka, M., Yamaguchi, S., Nako, M., 2010. Pilot test of Japan CO₂-ECBM field tests in the Ishikari coal basin of Japan. *International Journal of Coal Geology* 82, 287–298.

Gruszkiewics, M.S., Naney, M.T., Blencoe, J.G., Cole, D.R., Pashin, J.C., Carrol, R.E., 2009. Adsorption kinetics of CO₂, CH₄, and their equimolar mixture on coal from the Black Warrior Basin, west-central Alabam. *International Journal of Coal Geology* 77, 23–33.

Harpalani, S. and Schraufnagel, R. A., 1990. Shrinkage of coal matrix with release of gas and its impact on permeability of coal. *Fuel* 69, 551–556.

Komaki, H., 2006. Pilot Test of Japan CO₂ Geosequestration in Coal Seams Project. *Chishitsu News* 621, 16–23.

Larsen, J. W., 2004. The effects of dissolved CO₂ on coal structure and properties. *International Journal of Coal Geology*, 57, 63–70.

Laubach, S.E., Marrett, R., Olson, J.E., Scott, A.R., 1998. Characteristics and origins of coal cleat: a review. *International Journal of Coal Geology* 35, 175-207.

Levin, J.R., 1996. Model study of the influence of matrix shrinkage on absolute permeability of coal bed reservoirs. In *Coalbed Methane and Coal Geology*, Special Publication 109, 197–212.

Majewska, Z., Ceglarska-Stefanska, G., Majewski, S., Zietek, J., 2009. Binary gas sorption/ desorption experiments on a bituminous coal: simultaneous measurements on sorption kinetics, volumetric strain and acoustic emission. *International Journal of Coal Geology* 77, 90–102.

Mavko, G., Nolen-Hoeksema, R., 1994. Estimating seismic velocities at ultrasonic frequencies in partially saturated rocks. *Geophysics* 59, 252–258.

Mavko, G., Mukerji, T., 1998. Bounds on low frequency seismic velocities in partially saturated rocks. *Geophysics* 63, 918–924.

Mazumber, S., Wolf, K.H., 2008. Differential swelling and permeability change of coal in response to CO₂ injection for ECBM. *International Journal of Coal Geology* 74, 123–138.

Palmer, I., Mansoori, J., 1998. How permeability depends on stress and pore pressure in coalbeds: a new model. *Society of Petroleum Engineers Reservoir Evaluation and Engineering*. Paper SPE52607, 539-544.

Pan, Z., Connell, L.D., 2007. A theoretical model for gas adsorption-induced coal swelling. *International Journal of Coal Geology* 69, 243–252.

Pan, Z., Connell, L.D., Camilleri, M., 2010. Laboratory characterisation of coal reservoir permeability for primary and enhanced coalbed methane recovery. *International Journal of Coal Geology* 82, 252–261.

Reucroft, P.J., Patel, H., 1986. Gas-induced swelling in coal. *Fuel* 65, 816–820. Reucroft, P.J., Sethuraman, A.R., 1987. Effect of pressure on carbon dioxide induced coal swelling. *Energy & Fuels* 1, 72–75.

Skawinski, R., 1999. Considerations referring to coal swelling accompanying the sorption of gases and water. *Archives of Mining Sciences* 44, 425–434.

Walker, P.L., Verma, S.K., Rivera-Utrilla, J., Khan, M.R., 1988. A direct measurement of expansion in coals and macerals induced by carbon dioxide and methanol. *Fuel* 67, 719–726.

White, C.M., Smith, D.H., Jones, K.L., 2005. Sequestration of carbon dioxide in coal with enhanced coalbed methane recovery. *Energy & Fuels* 19, 659–724.

Xue, Z., Ohsumi, T., 2004. Laboratory measurements on gas permeability and P-wave velocity in two porous sandstones during CO₂ flooding. *Journal of MMIJ* 120, 91–98 (in Japanese with English abstract).

Xue, Z., 2005. Application of rock physics study to seismic monitoring of injected CO₂ in geological sequestration. *Journal of Geography* 114, 988–1002.

Xue, Z., Ohsumi, T., 2005a. Experimental studies on coal matrix swelling due to carbon dioxide adsorption and its effect on coal permeability. *Journal of MMIJ* 121, 231–239 (in Japanese with English abstract).

Xue, Z., Ohsumi, T., 2005b. Experimental studies on seismic monitoring of CO₂ in geological sequestration. *Journal of Groundwater Hydrology* 47, 29–44.