二酸化炭素注入に伴う多孔質砂岩の 透気係数と弾性波速度の測定に関する実験的研究*

薛 自 求¹ 大 隅 多 加 志²

Laboratory Measurements on Gas Permeability and P-wave Velocity in Two Porous Sandstones During CO₂ Flooding

by Ziqiu XUE^{a*} and Takashi OHSUMI^a

a. Research Institute of Innovative Technology for the Earth, Senior Researcher, 9-2, Kizugawadai, Kizu-cho,
Soraku-gun, Kyoto, 619-0292, Japan (*Corresponding Author : E-mail xue@rite.or.jp)

Laboratory experiments were conducted to measure gas permeability and P-wave velocity under hydrostatic pressure in Shirahama and Tako sandstones with porosity of 12% and 24%, respectively. In dry samples, gas permeability and P-wave velocity were significantly changed with increasing hydrostatic pressure in Shirahama sandstone, as a result of the closure of micropores with low aspect ratio, while in Tako sandstone they were less affected. In water-saturated sample, velocity changes caused by CO₂ injection, are typically on the order of -6%. P-wave velocities decreased almost simultaneously along horizontal paths in two orthogonal directions. Results of P-wave velocity tomography suggested that cross-well seismic profiling is useful to monitor migrations of the injected CO₂ in geological sequestration sites.

KEY WORDS : Carbon Dioxide, Porous Sandstone, P-wave Velocity, Strain, Gas Permeability, Hydrostatic Pressure

1. は じ め に

二酸化炭素 (CO₂) の地中貯留はノルウェー沖合いにある北海油田のスライプナー(Sleipner) 鉱区での CO₂ 地中圧入事業を機に、地球温暖化対策の即効的技術として注目されるようになった。スライプナー鉱区では天然ガス精製時に分離した CO₂ を海底下約 1000m の帯水層に圧入しており、その事業規模は年間約 100 万 t となっている¹⁾。帯水層は主に多孔質砂岩からなっており、CO₂ 地中貯留の有望なサイトと期待されている^{2,3)}。CO₂ を帯水層に圧入すると、その一部は地層水に溶解するが、残りの CO₂ は気相を形成する。地下 800m 以深の帯水層では地温勾配から考えて 31℃ 以上であり、CO₂ は超臨界状態にあるが、その密度は地層水より小さい。このため、地層水との密度差によって、CO₂ は帯水層上部へ移行すると考えられている⁴⁾。一方、溶解した CO₂ は地層水の流れに乗って移動するが、地層水の移動速度が毎年 1 ~ 10cm と極めて遅い⁵⁾。したがって、地中貯留では CO₂ を長期にわたって地下に貯留できるほか、地層を構成する岩石との化学反応により炭酸塩として固定されることも期待できる⁶⁾。

地中貯留の長期安全性を検討する場合、帯水層に圧入された CO₂ の挙動を把握することが重要な研究課題である。帯水層に圧入された CO₂ は岩盤中の間隙水を幾分押し退けながら、圧入井から遠方へ広がっていく。その際、岩盤に含まれる地層水の飽和度は減少し、CO₂ 飽和度は増加する。このような CO₂ と地層水の置換プロセスによって、岩盤を伝播する弾性波速度は減少する。こ

のため、弾性波を用いる物理探査法は CO₂ 挙動をモニタリングする有効なツールとして注目されている⁷⁾。一方、CO₂ は地層水より高い圧力で圧入するため、CO₂ 圧入によって地層水の間隙圧が急激に増加する測定事例が報告されている⁸⁾。CO₂ 圧入に伴って、地層水の圧力が増加する現象は浸透率が 25md(ミリダルシー) 以下の岩盤で起こりやすいと指摘されている⁹⁾。このため、浸透性の低い帯水層を対象とする弾性波探査では CO₂ 飽和度と水圧上昇の複合効果を得ていると考えられる。

CO₂ 注入による多孔質砂岩の弾性波速度の変化を調べた実験結果が報告されている¹⁰⁾。これまでの測定実験では、CO₂ 注入に伴う弾性波速度の変化の計測に留まっており、注入された CO₂ 挙動の把握には至っていない。本研究では弾性波速度の変化を基にトモグラフィ解析によって、多孔質岩石中を移動する CO₂ フロントの挙動をモニタリングすることを試みた。また、CO₂ フロントの挙動が多孔質砂岩の孔隙特性に大きく依存することを考慮して、孔隙率が異なる 2 種類の砂岩を用いた。本研究では静水圧下で孔隙特性と密接に関係する透気係数やひずみを把握した上で、CO₂ フロントのモニタリング実験を行った。弾性波トモグラフィ解析結果は、弾性波探査が帯水層に圧入された CO₂ のモニタリングツールとしての有効性を示している。

2. 実 験 概 要

2・1 岩石試料

本研究では白浜砂岩(SS)と多胡砂岩(TS)を測定試料として用いた。ブロックサンプルから長軸方向が堆積層理面と直交するように円柱試料をコアリングした。測定試料の長さとは直径はそれぞれ 100mm と 50mm である。白浜砂岩の孔隙率は約 12% であり、Fig.1(a) は水銀ポロシメータによって求めた孔隙半径の分布を示してい

* 2003 年 7 月 16 日受付 12 月 11 日受理

1. 普通会員 (財)地球環境産業技術研究機構 主任研究員

2. (財)地球環境産業技術研究機構 主席研究員

[著者連絡先] FAX 0774-75-2313 ((財)地球環境産業技術研究機構・薛)

E-mail : xue@rite.or.jp

キーワード : 二酸化炭素, 多孔質砂岩, 弾性波速度, ひずみ, 透気係数, 静水圧

Fig. 1 Pore size distributions in Shirahama (a) and Tako sandstone (b), obtained by the mercury-injection method (after Mino et al., 1989).

る。白浜砂岩の孔隙半径は $0.001 \sim 1 \mu\text{m}$ となっているが、そのうち $0.8 \mu\text{m}$ の孔隙が全体の約 30% を占めている。一方、多胡砂岩では Fig.1(b) に示す通り、孔隙半径が $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ となっており、全体の約 30% が半径 $2 \mu\text{m}$ の孔隙である。多胡砂岩の孔隙率は約 24% である。このように、両砂岩の孔隙率と孔隙の大きさには明瞭な差異が存在する¹¹⁾。

Fig.2 は岩石試料に貼り付けた圧電素子とひずみゲージの配置を示している。円柱試料の側面では弾性波測定用の圧電素子を貼りつけるために、 90° 間隔で計 4 箇所に幅約 8mm の面出しを行った。各面出し箇所では上から下まで等間隔で 1MHz の共振周波数の圧電素子 (P 波) を計 4 個貼り付けた。また、静水圧負荷に伴う岩石試料の変形を測定するために、試料側面にはクロスタイプひずみゲージ (ゲージ長: 10mm) を計 4 枚貼り付けた。

実験では測定試料を高圧容器にセットする必要があるが、圧電素子とひずみゲージを貼り付けてから試料表面をシリコンゴムで被覆し、封圧媒体のオイルが試料内部に浸入することを防いだ。

2・2 透気試験法

透気試験法はその測定原理によって圧力制御法と流量制御法に分類されている¹²⁾。圧力制御法は岩石試料の一端に一定のガス圧を加え、反対側の端面から流出する気体の流量を計測し、透気係数を求める試験法である。一方、流量制御法は試料の一端に一定流量で気体を注入し、それによって生じる試料両端の圧力差を計測し、透気係数を求める試験法である。Takeda et al.¹³⁾ は圧縮空気を透気媒体として、同一砂岩試料に圧力制御法と流量制御法をそれぞれ適用したところ、試験法による透気係数の差異が殆どないことを確認した。

本研究では圧力制御法を採用しており、透気試験システムの概念図を Fig.3 に示す。ガスボンベより得た CO_2 を内容積 1000cc の貯留槽 (耐圧タンク) に充填し、 CO_2 ガスの温度を室温 (23°C) に調整してから測定試料に注入することにした。 CO_2 の温度は貯留槽に取り付けた (株) 東京測器研究所製の温接点加工済み熱電対 (T タイプ、温度レンジ: $-270^\circ\text{C} \sim +400^\circ\text{C}$; 読取り精度: 0.1°C) で測定した。また、 CO_2 の注入圧は (株) アサヒエンタプライズ社製の小型高性能デジタルレギュレータ S640 (圧力レンジ: $0 \sim 0.25\text{MPa}$; 精度: $\pm 0.5\%$) を用いて制御した。測定試料を透過した CO_2 の流量は、予めキャリブレーションされたテフロン製計測チューブに封入したマノメータオイルの移動距離を基に算出された。また、 CO_2 流量の測定に影響する室内温度変動を抑えるために、エアコンを連続運転させ、室温を 23°C となるように工夫した。透気係数は定常状態に達してから流量を基に、次式より算出される。

$$k = \frac{2Q_g \eta P_a}{A} \cdot \frac{l}{P_0^2 - P_l^2} \quad (1)$$

ここで、 k は透気係数、 η は CO_2 の粘性係数 ($=14.91 \mu\text{Pa} \cdot \text{s}$)、 Q_g は大気圧下における CO_2 の流量 (m^3/s)、 P_a は大気圧 (Pa)、 A は測定試料の断面積 (m^2)、 l は測定試料の長さ (m)、 P_0 と P_l はそれぞれ CO_2 流入側と流出側における絶対圧力 (Pa) である。

Fig. 2 An unfolding diagram showing locations of piezo-electric transducers and strain gages cemented on the sandstone sample. Sixteen piezo-electric transducers numbered from 1 to 16, were arranged in 4×4 to monitor movements of the CO_2 front in two orthogonal directions. Letters of n and p followed gage numbers indicate strains measured normal and parallel to bedding plane of rock sample, respectively.

Fig. 3 A schematic diagram of the experimental apparatus. RES=Reservoir tank, REG 1=Regulator 1 (Max: 0.6MPa), REG 2=Regulator 2 (Max: 0.2MPa), PT 1 and 2=Pressure Transducer 1 and 2, MES. TUBE=Measuring Tube for displaced water.

2・3 弾性波測定法と CO_2 フロントのモニタリング

本研究ではパルス透過法を用いて P 波速度を測定した。乾燥試料の透気係数を測定した際、静水圧の負荷に伴う P 波速度とひずみの変化も測定した。これらの測定結果は両砂岩の孔隙特性の違いを検討するために用いた。一方、含水状態の測定試料については、 CO_2 ガスを注入しながら、一定の時間間隔で P 波速度を測定し、孔隙構造中を移動する CO_2 の挙動をモニタリングした。P 波測定では弾性波トモグラフィ解析が可能となるように、スイッチアレイシステムが導入された。このシステムではパルスジェネレータから得たパルス信号を 1 個の圧電素子に与えると、それ以外の 15 個の圧電素子は順次に受信に切りかえられながら、P 波速度を測定することができる。ただし、発信子と同じ列にある圧電素子に対しては測定経路としない。また、同じ経路上の発信子と受信子の切り替えは 1 回しか測定しない。このため、1 回の計測では計 96 個の経路 (ray path) の波形データを得ることができる。受信波形はデジタルオシロスコープで確認しながら、GPIB 経由でコンピュータに記録された。その際、波形のノイズを減らすために、8 回のスタッキング (波形の重ね合せ) を行った。

P 波速度を用いてトモグラフィ解析を行うとき、岩石試料の長軸を均等に 6 分割した。また、長軸と直交する平面 (両端面) では 1 辺の長さが試料直径の $1/3$ となる平行四辺形を中心にして、

Fig. 4 A 3D view showing 30 blocks for reconstruction of P-wave velocity profiles.

Fig.4 のとおり 5 分割した。このように試料全体は計 30 個のブロックに分割されたが、圧電素子の数が少ないため、弾性波トモグラフィ解析では汎用ソフト Mathematica の Interpolation 関数を用いて、3 次近似でデータ補完を行った。

3. 実験結果

3・1 透気試験の結果

透気試験では白浜砂岩と多胡砂岩の一軸圧縮強度を考慮して、静水圧をそれぞれ 25MPa と 15MPa まで段階的に負荷しながら透気係数の変化を測定した。試料の上端より 0.2MPa の圧力で CO₂ ガスを注入し、大気圧下に開放された試料下端から出たガス流量を基に透気係数を求めた。透気試験で得られた両砂岩のひずみ、P 波速度及び透気係数の測定結果をそれぞれ Table 1, Table 2 に示し、以下ではこれらの結果について述べる。なお、本研究では圧縮ひずみを正としている。

(1) 静水圧の負荷に伴うひずみの変化

白浜砂岩 (SS) と多胡砂岩 (TS) の測定試料より得たひずみの測定結果を Fig.5 に示す。この図では G1 ~ G4 がひずみゲージの番号

Table 1 Results of gas permeability, velocity and strain obtained from the dry sample of Shirahama sandstone under hydrostatic pressure.

Pressure (MPa)	Permeability (10 ⁻³ darcy)	Average Velocity (km/s)	Average Strain_n ($\mu\epsilon$)	Average Strain_p ($\mu\epsilon$)	Volumetric Strain ($\mu\epsilon$)
0	-----	2.70	-----	-----	-----
2	3.75	2.85	385	338	1061
5	3.06	2.99	852	713	2277
10	2.68	3.23	1538	1267	4071
15	2.51	3.41	2025	1645	5314
25	2.18	3.62	2667	2173	7014

Table 2 Results of gas permeability, velocity and strain obtained from the dry sample of Tako sandstone under hydrostatic pressure.

Pressure (MPa)	Permeability (10 ⁻³ darcy)	Average Velocity (km/s)	Average Strain_n ($\mu\epsilon$)	Average Strain_p ($\mu\epsilon$)	Volumetric Strain ($\mu\epsilon$)
0	-----	2.86	-----	-----	-----
3	7.26	2.91	233	204	640
5	7.18	2.95	435	377	1189
7	-----	2.99	621	534	1689
10	6.83	3.03	910	774	2458
15	6.13	3.10	1397	1173	3743

Fig. 5 Strains obtained on Shirahama (a) and Tako sandstone (b) vs pressure. n and p indicate strains measured normal and parallel to the bedding plane, respectively.

である。また、ゲージ番号に続く n と p はそれぞれひずみゲージが堆積層理面に直交と平行することを表している。静水圧の負荷に伴って、両砂岩のひずみはともに増加するが、ひずみの増加傾向が異なっている。試料 SS では 10MPa まではひずみの増加が著しいが、圧力が大きくなるにつれて、ひずみの増分が徐々に小さくなっている (Fig.5a)。一方、多胡砂岩の場合、Fig.5b のように圧力の負荷に伴うひずみ増分が小さく、全体のひずみ量が少ない。静水圧 15MPa 下では白浜砂岩に比べて約 500μ ひずみが少ない。

両試料の静水圧～ひずみ曲線の形状にも違いが認められ、白浜砂岩では上へ凸となっている。これに対し、多胡砂岩では低圧領域ではやや下へ凸となっているが、高圧領域ではほぼ直線である。また、堆積層理面と直交する方向 (n) と平行する方向 (p) のひずみを比較すると、両試料とも n 方向のひずみがやや大きく、その差は静水圧の増加に伴って徐々に大きくなっている。静水圧 15MPa における n 方向と p 方向のひずみの差を比べると、白浜砂岩と多胡砂岩ではそれぞれ最大で約 500μ (G1) と 400μ (G4) に達している。

(2) 静水圧の負荷に伴う P 波速度の変化

ひずみと同時に測定された試料 SS と TS の P 波速度の結果を Fig.6 に示す。Fig.6a は試料 SS の測定結果であり、この試料では測定経路による P 波速度のばらつきが約 2% と小さい。P 波速度は静水圧の負荷に伴って大きく増加しており、その増加傾向はひずみとよく似ている (Fig.5a 参照)。一方、試料 TS では P 波速度のばらつきが約 8% に達しており、P 波速度の急激な増加はみられなかった (Fig.6b)。静水圧を 15MPa まで負荷したとき、Table 1 の通り、試料 SS の P 波速度は 2.70km/s から 3.41km/s まで増加した。これに対し、試料 TS の P 波速度は 2.86km/s から 3.10km/s まで増加した (Table 2 参照)。P 波速度の増加率に注目すると、試料 SS が約 26% の増加を示しており、試料 TS の 8% を大きく上回っ

ている。なお、Table 1,2 に示す P 波速度の平均値はそれぞれ Fig.6a と Fig.6b のデータに基づいて算出された。

(3) 静水圧の負荷に伴う透気係数の変化

Fig.7 は静水圧の負荷に伴う試料 SS と TS の透気係数と体積ひずみの変化を示している。ここでは周方向 (p) のひずみを 2 倍にしてから、長軸方向 (n) のひずみとの和を体積ひずみとして定義している。静水圧の増加に伴って、両試料の透気係数はともに減少するが、減少率に大きな差異が認められた。試料 SS では静水圧を 2MPa から 15MPa まで負荷したとき、透気係数が 3.75×10^{-4} から 2.51×10^{-4} darcy に減少し、その減少率は約 32% であった。一方、試料 TS では静水圧を 3MPa から 15MPa まで負荷したとき、透気係数は 7.13×10^{-3} から 5.97×10^{-3} darcy 減少したが、その減少率は約 16% に留まった。Fig.7 において、試料 SS では体積ひずみが急激に増加する間では透気係数が大きく減少した。このような体積ひずみと透気係数の急激な変化について、試料 TS では認められなかった。

静水圧の増加に伴う体積ひずみと P 波速度の変化を Fig.8 に示す。この図に示す P 波速度は全チャンネルの P 波速度を算術平均したものである。試料 SS では P 波速度の増加傾向が体積ひずみとよく似ているが、試料 TS では体積ひずみが大きく増加しても、P は速度の増分は小さかった。

3・2 CO₂ 注入による P 波速度の変化

(1) 白浜砂岩について

透気試験終了後の試料 SS については、まず静水圧を 7MPa まで除荷してから、試料下端より純水を注入した。純水の注入圧は 3MPa としたが、注水開始後約 12 時間を経過しても試料全体に水が浸透しなかった。Fig.9a に示す通り、水が浸潤した領域 (ch.1-9, 2-10, 5-13, 6-14) と浸潤していない領域 (ch.3-11, 4-12, 7-15, 8-16) の P 波速度には 10% 以上の差が認められた。この状態で試料

Fig. 6 P-wave velocities measured along eight paths parallel to the end surface of the samples in Shirahama (a) and Tako sandstone (b) vs pressure.

Fig. 7 Gas permeability and volumetric strain as a function of pressure, obtained from Shirahama (a) and Tako sandstone (b).

Fig. 8 Average velocity of P-wave and volumetric strain as a function of pressure, obtained from Shirahama (a) and Tako sandstone (b).

Fig. 9 Changes of P-wave velocity obtained on Shirahama sandstone when injecting water into dry sample (a) and gaseous CO₂ gas into the water-flooded sample (b).

下端より 0.2MPa の圧力で CO₂ ガスを注入し、P 波速度の経時変化を Fig.9b に示した。しかし、CO₂ ガスを注入してから約 6 時間を経過しても浸潤領域の P 波速度の変化がほとんどみられなかった。また、CO₂ 注入圧を制御するデジタルレギュレータの使用圧の制限により、試料 SS への CO₂ ガス注入はやむを得ず中断した。

(2) 多胡砂岩について

試料 TS については、静水圧を 5MPa に除荷してから純水を注入した。この試料の浸透率が比較的大きいため、水を浸透させるのにあまり時間がかからなかった。試料 TS については、静水圧 5、10 及び 15MPa の 3 ケースにおいて、それぞれ含水状態の試料下端よ

り CO₂ ガスを注入しながら P 波速度の変化を測定した。なお、静水圧 10 と 15MPa のケースではともに前の測定終了後に純水を透過させた。測定試料に残留する CO₂ などを取り除くために、十分に長い時間をかけて純水を注入してから次の CO₂ 注入実験に備えた。

含水状態の多胡砂岩に CO₂ ガスを注入すると、間隙水の一部が置換され、試料上端より排出される。実験では試料上端の間隙水圧ラインを大気圧に開放し、間隙水圧の上昇による P 波速度への影響を抑えた。また、CO₂ 注入によって置換される少量の間隙水を早期に検出できるように、排水側の圧力ラインを水で満たしておいた。

Fig.10, Fig.11, Fig.12 は含水状態の試料 TS にそれぞれ 5、10

Fig. 10 Changes of P-wave velocity vs elapsed time when injecting gaseous CO₂ into the water-saturated Tako sandstone. The sample was subjected to a constant pressure of 5MPa.

Fig. 11 Changes of P-wave velocity vs elapsed time when injecting gaseous CO₂ into the water-saturated Tako sandstone. The sample was subjected to a constant pressure of 10MPa.

Fig. 12 Changes of P-wave velocity vs elapsed time when injecting gaseous CO₂ into the water-saturated Tako sandstone. The sample was subjected to a constant pressure of 15MPa.

Fig. 13 The accumulated water flow obtained from the water-saturated Tako sandstone during CO₂ injection. Three measurements were repeated on the same sample under pressures of 5, 10 and 15MPa.

Table 3 Results of velocity changes when injecting gaseous CO₂ into water-saturated Tako sandstone under pressures of 5, 10 and 15MPa, respectively.

Ray Path	5MPa			10MPa			15MPa		
	V ₀	V ₁₄₅	$\Delta V/V_0$ (%)	V ₀	V ₁₄₅	$\Delta V/V_0$ (%)	V ₀	V ₁₄₅	$\Delta V/V_0$ (%)
ch.8-16	3.09	2.93	-4.96	3.14	3.01	-3.96	3.18	3.05	-4.12
ch.7-15	3.12	2.99	-4.14	3.19	3.07	-3.86	3.23	3.12	-3.22
ch.6-14	3.16	3.00	-5.15	3.20	3.08	-3.81	3.23	3.12	-3.47
ch.5-13	2.99	2.79	-6.72	3.05	2.88	-5.64	3.08	2.93	-4.81
ch.4-12	3.08	2.96	-3.77	3.13	3.00	-3.87	3.14	3.06	-2.67
ch.3-11	3.08	2.94	-4.42	3.12	3.00	-3.69	3.14	3.07	-2.29
ch.2-10	3.15	2.99	-4.83	3.15	3.02	-4.22	3.21	3.09	-3.62
ch.1-9	2.94	2.72	-7.55	2.98	2.79	-6.34	3.00	2.82	-6.00
Average	3.07	2.92	-5.19	3.12	2.98	-4.42	3.15	3.03	-3.78

及び 15MPa の静水圧を荷重したまま、CO₂ ガスを 0.2MPa で注入したときの P 波速度の経時変化である。Fig.10 は静水圧 5MPa の場合の測定結果である。CO₂ 注入開始約 30 分後、まず試料下端に近い ch.1-9 の P 波速度が 2.94km/s から 2.85km/s に減少した。このチャンネルと同じ水平面にあり、互いに直交する ch.5-13 の P 波速度は 2.99km/s から 2.91km/s に減少した。それからさらに 30 分ほど経過すると、ch.1-9 と 5-13 の P 波速度はほぼ一定値に収束した。一方、その他のチャンネルでは P 波速度が遅れて減少し始めるが、約 110 分経過後ともにほぼ平衡に達した。

Fig.11 と Fig.12 はそれぞれ静水圧 10 と 15MPa の場合の測定結果である。これらの測定ケースでは、静水圧 5MPa でみられた P 波速度の減少傾向とよく似ている。Table 3 は各静水圧下における CO₂ 注入前と注入開始 145 分後の P 波速度の変化を示している。3 つの測定ケースのうち、静水圧 5MPa の方が最も P 波速度の減少率が大きく、約 4.1 ～ 7.6% となっている。静水圧 10 と 15MPa では、それぞれ 3.7 ～ 6.3% と 2.3 ～ 6.0% となっている。P 波速度の減少率が静水圧の増加に伴って小さくなっている。

Fig.13 は 3 つの測定ケースで得られた積算排水量の経時変化である。排水量は分解能 0.01g の電子天秤で測定された。その経時変化は計 3 つのステージに分けることができる。静水圧 5MPa のケースを例に説明すると、ステージ I ではいずれの測定ケースともほぼ同じ増加傾向を示している。ステージ II ではともに排水量が大きく増加しているが、5MPa の方が最も増加が著しい。ステージ III では排水量が徐々にある平衡状態に達している。

3・3 CO₂ フロントのモニタリング

含水状態の試料 TS に CO₂ を注入してから P 波速度の変化に基

づいて、トモグラフィ解析を行い、CO₂ フロントの挙動をモニタリングした。静水圧 5 と 15MPa の両測定ケースを例に、CO₂ フロントモニタリングの結果について述べる。Fig.14 と Fig.15 では縦軸 (Z) がともに P 波速度の減少率 (%) を表している。P 波速度が減少した領域は、CO₂ ガスの分布範囲と対応し、その減少率は CO₂ ガス飽和度とみなすことができる。図中の X 軸は円柱試料の端面の原点 (0) を中心に展開したものである。また、Y 軸は円柱試料の長軸を表している。

Fig.14 は静水圧 5MPa の測定ケースより得られた CO₂ フロントの経時変化である。CO₂ ガスは試料下端 (BTM) より注入されている。注入開始 20 分後に試料下端では、P 波速度のわずかな減少が認められた。注入開始後約 60 分を経過すると、試料下端の P 波速度の減少はより鮮明になった。このように P 波速度の減少を基に CO₂ フロントの移動をみると、試料上端 (TOP) に到達したことを明瞭に確認できた。P 波速度の減少率が試料下端ほど大きい、時間経過と共に試料上下端の差異は小さくなっている。また、X 軸方向の P 波速度の減少率のばらつきが小さい。

Fig.15 は静水圧 15MPa のケースの測定結果である。静水圧 5MPa の測定結果と比べて、同じ経過時間における P 波速度の減少率が小さく、X 軸方向における P 波速度の減少率のばらつきも大きい。静水圧の増加によって、CO₂ 浸透挙動に明瞭な違いが認められた。

4. 考 察

4・1 透気係数と孔隙特性

多孔隙砂岩には大小様々な孔隙が存在し、扁平な孔隙よりも球形に近いものが多く含まれる¹⁴⁾。静水圧下における砂岩のひずみ、P 波速度及び透水 (気) 性は孔隙率のほか、孔隙の大きさや孔隙構

Fig. 14 Reconstructed P-wave velocity changes relative to the P-wave velocity profile when injecting gaseous CO₂ into the water-flooded Tako sandstone. The sample was subjected to a constant pressure of 5MPa.

造 (pore structure) にも強く影響される^{15,16)}。静水圧の負荷によって扁平な孔隙が閉鎖されると、砂岩のひずみと P 波速度は大きく増加し、透気性は著しく減少する。

白浜砂岩では静水圧 10MPa までにひずみ、P 波速度及び透気係数の急激な変化がみられた。これは試料に含まれた半径 0.01 μ m オーダの孔隙が圧力の負荷によって閉鎖されたと考えられる。ひずみと P 波速度の急激な増加に対応して、透気係数が著しく減少したことは、閉鎖された孔隙がガスの流路 (flow path) を構成していたことを示している。静水圧 10MPa 以降では透気係数の減少が小さくなり、10MPa 以上の圧力によって閉鎖される孔隙が少ないことを示唆している。白浜砂岩に比べて、多胡砂岩では孔隙の大きさが約 10 倍大きい。この試料では静水圧の負荷によって閉鎖される孔隙が少ないため、ひずみ、P 波速度及び透気性に及ぼす影響は小さかったと解釈できる。

Brace¹⁷⁾ は岩石の孔隙特性 (孔隙率、孔隙の大きさ) と静水圧～ひずみ曲線との関係について、つぎのように指摘した。孔隙率が小さく、扁平な孔隙が多い岩石では、静水圧～ひずみ曲線が上に凸の形状を示す。孔隙率が大きく、扁平な孔隙が少ない岩石で

Fig. 15 Reconstructed P-wave velocity changes relative to the P-wave velocity profile when injecting gaseous CO₂ into the water-flooded Tako sandstone. The sample was subjected to a constant pressure of 15MPa.

は下に凸の形状をなす。この指摘に基づくと、本研究に用いた白浜砂岩は前者、多胡砂岩は後者にそれぞれ相当する。このように、静水圧～ひずみ曲線の形状より、岩石の孔隙特性を間接的に把握することが可能である。

4・2 CO₂ 注入による P 波速度の変化

弾性波を利用して石油や天然ガスを探査する手法では、流体を含む多孔質砂岩の弾性波速度を評価する場合、次に示す Gassmann の式がよく用いられている。

$$V_p = \sqrt{\frac{K + (4/3)G}{\rho}} \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$K = K_d + \frac{(1 - K_d / K_s)^2}{\phi / K_f + (1 - \phi) / K_s - K_d / K_s^2} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 V_p は P 波速度、 G はせん断係数、 K は砂岩が流体を含む場合の体積弾性率、 K_d は乾燥状態の砂岩の体積弾性率、 K_s は砂岩の固体部分 (solid frame) の体積弾性率、 K_f は流体の体積弾性率である。 ρ と ϕ はそれぞれ砂岩の密度と孔隙率である。

式 (2) と (3) より、砂岩の P 波速度は試料だけでなく、孔隙中のガスや水の体積弾性率と密度にも大きく依存する。CO₂ ガスの体

積弾性率は小さく、式 (3) 右辺の第 2 項がゼロに近いとみなせるため、試料の体積弾性率は乾燥状態とほぼ等しい。このため、透気実験中に 0.2MPa で CO₂ ガスを注入したが、両砂岩の P 波速度にはほとんど変化がみられなかった。

一方、乾燥試料に水を注入すると、試料全体の密度は増加するが、水と試料の体積弾性率があまり変わらないため、式 (2) において体積弾性率 K の増加による効果が相対的に大きい。したがって、測定試料の P 波速度は注水によって増加した原因は試料の体積弾性率が相対的に大きくなったためである。注水による試料 SS と TS の P 波速度の増加率を比べると、それぞれ最大で約 12.5% と 4.3% となっている。測定条件がほぼ同じでありながら、両砂岩の P 波速度の増加率に大きな違いが現れたのは重要な意味をもっている。同様な現象は CO₂ 注入の測定実験でも起こる可能性がある。注水に伴う P 波速度の変化について、孔隙の大きさを考慮しない Gassmann 式では実測値より数 % ほど小さい予測値を得ることが報告されている¹⁸⁾。

含水状態の砂岩試料に CO₂ ガスを注入すると、間隙水の一部が置換されるため、測定試料は徐々に不飽和へと変わっていく。不飽和状態にある測定試料の体積弾性率は乾燥状態とあまり変わらないが、試料の密度がより大きくなるため、式 (2) より P 波速度は小さくなる。このため、静水圧が異なる 3 つの測定ケースにおいて、P 波速度が減少したのは CO₂ 注入によって試料 TS の密度が相対的に大きくなったためである。今後白浜砂岩への注気実験を再開し、多胡砂岩の測定結果と比較することにより、両砂岩の P 波速度に及ぼす孔隙の大きさの影響を明らかにする。本研究では間隙水を排出する試料上端を大気圧下に開放し、CO₂ 注入に伴う間隙水圧の増加による測定結果への影響を抑えた。弾性波速度のうち、P 波速度は CO₂ 飽和度と間隙水圧とともに影響されるが、S 波速度は間隙水圧の影響を殆ど受けない¹⁹⁾。現場で実施される弾性波探査について、P 波速度と S 波速度を同時に測定することが望ましいがまだ実施例が報告されていない。S 波速度の測定結果を基に、いかに間隙水圧の影響を分離するかは今後の研究課題である。

4・3 P 波速度変化に基づく CO₂ 挙動のモニタリング

Fig.14 と Fig.15 に示した CO₂ 注入後の P 波速度の経時変化は間接的に CO₂ フロントの挙動を表している。簡易トモグラフィ解析によって得られた CO₂ フロントの挙動は P 波速度と間隙水排出量の経時変化と調和的である。静水圧 5MPa のケースを例に説明すると、Fig.14 において CO₂ フロントが試料上端に達したのは注入開始してから約 30 分後である。これは間隙水排出曲線のステージ I に相当する (Fig.13 参照)。注入された CO₂ は、間隙水を押し退けながら試料上端へ移動するが、移動の速さはその圧力条件下の試料の透気係数に依存する。CO₂ フロントが試料上端に達した後は、透気係数が支配的になり、ブレイクスルー後の CO₂ ガスが排水ライン内の間隙水を押すため、ステージ II では CO₂ の流れが急激に加速されたと考えられる。ステージ II では CO₂ ガスとともに間隙水も一緒に排出されるが、CO₂ ガスだけ排出されると、ステージ III のとおり間隙水の排出量があまり増えなくなる。

静水圧 15MPa の場合、CO₂ フロントの形状が 5MPa のケースと異なっており、CO₂ の流れが複雑になっていることを示唆している。また、間隙水排出量の経時変化は、静水圧 5MPa とよく似ており、3 つのステージに分けることができる。興味深いことに、静水圧が異なる 3 つの測定ケースとも、ステージ II の排水量がほぼ同じであり、ステージ I のみ排水量の違い認められた。ステージ I における排水量は、試料の透気係数に大きく依存すると考えられる。この試料の透気係数は測定していないが、透気係数をみると、静水圧を 5MPa から 15MPa まで負荷することにより、透気係数は約 15%

減少した。この試料では静水圧の負荷に伴ってひずみがほぼ線形的に増加しており、P 波速度の増加も少ないことから、孔隙の閉鎖よりも変形の方が優勢であるといえよう。つまり、試料 TS には扁平な孔隙が少なく、透気係数の変化は孔隙の変形によるものと考えられる。孔隙の変形は CO₂ が試料上端に達するまでの浸透挙動に影響を与えたため、ステージ I における排水量の違いをもたらしたと解釈できる。孔隙に含まれる間隙水が注入された CO₂ によって、どのようなメカニズムで置換されるかは今後の研究課題である。

5. 結 論

白浜砂岩と多胡砂岩を用いた透気試験では、透気係数が孔隙の大きさに大きく影響されることが明らかになった。白浜砂岩では扁平な孔隙が静水圧の負荷によって閉鎖されるため、ひずみと P 波速度は急激に増加し、透気係数は著しく減少した。多胡砂岩では扁平な孔隙が少ないため、ひずみ、P 波速度及び透気係数の急激な変化はほとんどみられなかった。また、両砂岩の静水圧～ひずみ曲線の形状には明瞭な違いが認められた。白浜砂岩の場合、静水圧～ひずみ曲線が上に凸の形状を呈するが、多胡砂岩ではやや下に凸となっている。これは両砂岩試料に含まれる孔隙特性の違いを反映していると考えられ、静水圧～ひずみ曲線の形状より測定試料の孔隙特性を間接的に把握することが可能である。

乾燥状態の白浜砂岩と多胡砂岩へ水をそれぞれ注入すると、試料の P 波速度はともに増加するが、白浜砂岩の P 波速度の増加率がより大きい。注水や注気に伴う P 波速度の変化は、砂岩試料の孔隙特性に大きく影響されるため、孔隙特性を考慮に入れる必要がある。含水状態の多胡砂岩に CO₂ を注入すると、孔隙内の間隙水が CO₂ によって置換されるとともに、P 波速度の減少が認められた。静水圧 5MPa のケースにおける P 波速度の減少率が最も大きく、圧力が高いケースほど P 波速度の減少率が小さい。簡易弾性波トモグラフィ解析によって得られた CO₂ フロントの挙動は置換された間隙水の排出量の経時変化と調和的である。これは弾性波を用いた物理探査手法が排水層に圧入された CO₂ の挙動をモニタリングする有効性を示している。今後は弾性波速度の変化量を基に、CO₂ と間隙水の置換メカニズムや孔隙内に残留する間隙水を推定する実験を行う予定である。

References

- 1) A. Baklid, R. Korbol and G. Owren: Society of Petroleum Engineering, SPE, **36600** (1996), 269-277.
- 2) H. Koide, Y. Tazaki, Y. Noguchi, S. Nakayama, M. Iijima, K. Ito and Y. Shindo: Energy Convers. Mgmt, **33**(1992), 619-626.
- 3) S. Tanaka, H. Koide and A. Sasagawa: Energy Convers. Mgmt, **36**(1995), 527-530.
- 4) Van der Meer, L.G.H.: Energy Convers. Mgmt., **34**(1993), 959-966.
- 5) S. Bachu, W.D. Gunter and E. H. Perkins: Energy Convers Mgmt, **35**(1994), 269-279.
- 6) W. Gunter, B. Wiwchar and E. Perkins: Mineralogy and Petrology, **59**(1993), 121-140.
- 7) R. Arts, O. Eiken, A. Chadwick, P. Zweigel, L. van der Meer and B. Zinszner: Proc. 6th Int. Conference of Greenhouse Gas Control Technologies, (2002), pp.347-352.
- 8) Z. Wang, M. Cates and R. Langan: Geophysics, **63**(1998), 1604-1617.
- 9) Van der Meer, L.G.H.: Energy Convers. Mgmt., **33**(1992), 611-618.
- 10) Z. Wang and A. Nur: Soc. Petr. Eng. Res. Eng., **3**(1989), 429-439.
- 11) Y. Mino, W. Lin, M. Takahashi and K. Nishida: Proc. 33th Geotechnical Engineering Conference, (1989), pp.1243-1244.
- 12) G. Eischens and A. Swanson: Geotechnical Testing Journal, **19**(1996), 232-238.
- 13) M. Takeda, M. Zhang, T. Ezaki, M., Takahashi and Y., Mitani: J. Japan Society of Eng. Geology, **41**(2000), 210-217.
- 14) L. Caruso, G. Simmons and R. Wilkens: Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr., **22**(1985), 381-392.
- 15) R. Wilkens, G. Simmons, T. Wissler and L. Caruso: Int. J. Rock Mech. Min. Sci. & Geomech. Abstr., **23**(1986), 313-325.
- 16) Z. Xue, Y. Ishijima and M. Takahashi: Shigen-to-Sozai, **108**(1992), 769-775.
- 17) W. Brace: Pageoph, **116**(1978), 627-633.
- 18) Z. Xue and T. Ohsumi: Exploration Geophysics, **35**(2004), 21-28.
- 19) M. Toksoz, C. Cheng and A. Timur: Geophysics, **41**(1976), 621-645.