

# 珪質岩の力学的特性に及ぼす超臨界CO<sub>2</sub>の影響 評価に関する実験的研究

小玉 齊明<sup>1\*</sup>・木山 保<sup>2</sup>・薛 自求<sup>3</sup>・熊倉 聡<sup>2</sup>・西本 壮志<sup>4</sup>・石島 洋二<sup>4</sup>

<sup>1</sup>正会員 函館工業高等専門学校（〒042-3207 北海道函館市戸倉町14番1号）

<sup>2</sup>正会員 幌延地圏環境研究所（〒098-3207 北海道天塩郡幌延町栄町5番地3）

<sup>3</sup>正会員 地球環境産業技術研究機構（〒619-0292 京都府相楽郡木津町木津川台9丁目2番地）

<sup>4</sup>幌延地圏環境研究所

\*E-mail:kodama@hakodate-ct.ac.jp

CO<sub>2</sub>地中貯留研究において、キャップロックの長期安全性評価は基本的かつ重要な課題となるが、室内における力学的特性の評価は未だ十分に行われていない。本研究では北海道幌延町周辺に産する透水性の低い珪質岩を地下1000 m程度に存在するキャップロックに見立て、CO<sub>2</sub>が超臨界状態となる間隙水圧10MPa、温度40°C、有効封圧2~20 MPaの下で三軸試験を実施し、このときの超臨界CO<sub>2</sub>圧入の有無による力学的特性の相違に関する検証を行った。その結果、強度やポアソン比への影響は認められないものの、ヤング率と破断面の载荷軸からの角度がCO<sub>2</sub>の圧入により増大し、また破断面の形状もわずかに粗くなる傾向がみられた。

**Key Words:** rock, CO<sub>2</sub> injection, diatomite, triaxial tests, mechanical property

## 1. はじめに

CO<sub>2</sub>地中貯留技術の開発において、貯留層上部に存在するキャップロックの長期安全性の評価は基本的かつ重要な研究課題と位置づけられる。大規模発生源から分離回収されたCO<sub>2</sub>が地下1000 m付近の帯水層に圧入されると、地層水との密度差によって多くのCO<sub>2</sub>がキャップロック下部に分布すると想定される。このとき、間隙水圧は8 MPa程度、地温勾配3°C/100mとして温度は40°C前後になり、図-1のような相変化を生じるCO<sub>2</sub>は超臨界状態として存在すると考えられる。

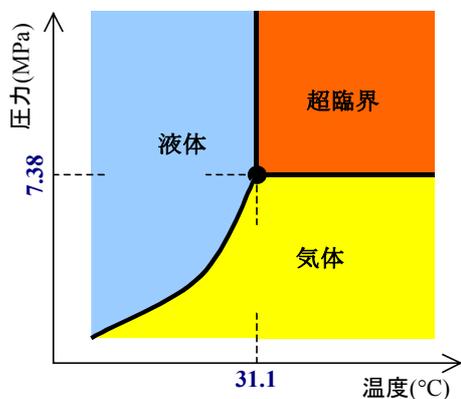


図-1 二酸化炭素の相図

キャップロックの典型的なモデルとして、浸透率が $\mu$ Darcy以下の泥質岩が挙げられるが、その力学特性についての解明は進んでいない。これは主に地下深部のコア試料の入手が困難なことや、軟弱な岩石の実験手法が十分に確立されていないことに起因する。そこで本研究では、地中貯留の候補サイトのキャップロック部の岩石に相当する第三紀泥質岩ボーリングコアから供試体を作成し、超臨界CO<sub>2</sub>注入による力学特性への影響の解明を目的として、含水飽和後、温度40°C・間隙水圧10MPaでCO<sub>2</sub>を圧入し、透過を確認してから圧縮試験を実施した。ここでは、実験方法およびCO<sub>2</sub>の有無で比較した力学的特性と破断面形状についてまとめる。

## 2. 岩石試料

本研究では、北海道北部幌延町周辺に点在する採石場の露頭岩盤から掘削直後の含水状態を保ったブロックで入手した硬質頁岩（稚内層）を直径50mm、長さ100mmの円柱形供試体に整形し、それぞれの試験に供した。なお、このとき岩石ブロックの層理面が不明であるため、ボーリング方向を統一して供試体を作製した。

同岩石は40-60%程度の空隙率を有する多孔質な岩石

で<sup>1)</sup>、吸放湿性や断熱性、遮音性、脱臭性等に優れるため、粉末状に加工されて壁材や脱臭剤として製品化されている。上位の珪藻質泥岩（声間層）では電子顕微鏡で鮮明に観察できる珪藻遺骸が4割程度<sup>1)</sup>存在するが、稚内層ではこれが崩れるような形となり、一部では2次鉱物の生成が確認される（図-2）。細孔容量・吸放湿特性はともにこの稚内層で声間層より大きい<sup>2)</sup>。表-1に計測された各物性値を示す。

表-1 岩石試料の諸物性値

P波速度 (km/s)	湿潤単位体積重量 (kN/m <sup>3</sup> )	乾燥単位体積重量 (kN/m <sup>3</sup> )	空隙率 (%)
1.941	16.856	11.871	50.84

### 3. 試験装置と試験方法

#### (1) 载荷試験装置

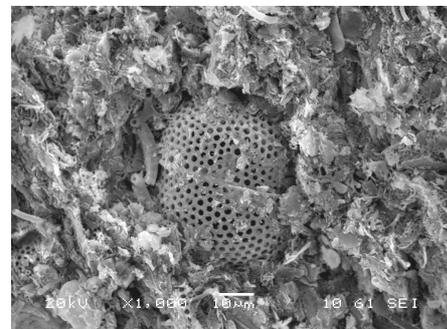
圧縮試験では軟岩用岩石試験装置（MTS社製810型、最大荷重500kN、油圧式）を使用した。この装置は油圧源、三軸セル（最大封圧50MPa）、封圧発生装置、周方向変位計、荷重計、軸アクチュエータから構成される。三軸セルは軸アクチュエータに固定され、封圧発生装置から側圧の供給を受ける。荷重計と周方向変位計はこの三軸セル内で使用し、一連のコントロールは軸アクチュエータに付属する制御装置および制御専用PCに支配されている。また、試験中に三軸セル内の温度を一定に保つため、セル周囲には低温恒温槽（EYELA社製、NCB-2400、40～50℃）と接続したステンレス容器内を40℃に保たれた不凍液が循環している。なお、材料試験機は、温度による微小な変形を防ぐために設定温度の40℃±2℃に制御された広さ9.0m<sup>2</sup>の恒温室内に設置した。

#### (2) 供試体の被覆

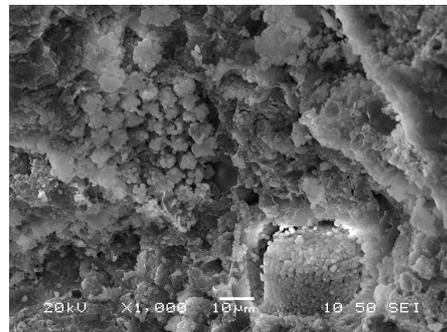
三軸試験において、供試体内部への封圧用油の進入を防ぐため、供試体周囲に被覆を施した。被覆チューブの材質は、横ひずみを計測するチェーン式変位計の応答精度を損なわない程度に薄く強度を持ち、また破壊後の供試体を拘束しないよう十分な収縮性のある点から、シリコン製熱収縮チューブ（信越シリコン、ST290HT）を使用した。図-3に被覆方法の概略図を示す。エンドピースと供試体の間にスチールメッシュを挟み、シールテープ、および自己融着テープでこれらを密着させた。このとき供試体-被覆間には、自由水が存在しないよう変位計の接触箇所を除きシリコン樹脂（GE東芝シリコン、TSE3455T）を塗布した。チューブ被覆後はその上からさらにクランプ式バンドでこれらを締め付けた。

#### (3) 間隙水圧負荷と超臨界CO<sub>2</sub>圧入の方法

前述のように、地下1000m付近の岩盤内にCO<sub>2</sub>を圧入した場合、貯留層上部のキャップロックは、地下水圧に加え、下部の貯留層より超臨界CO<sub>2</sub>の圧力を被ることになる。これを想定した本研究では、含水飽和状態の硬質頁岩供試体を、各試験の設定封圧、および間隙水圧10MPa（一定）まで1.0MPa/minの速度で負荷した後、十分に圧密させてから、上端面に水圧10MPaをかけたまま、下端面からCO<sub>2</sub>圧12MPaを負荷した。この状態で2日程度静置して、上端面からCO<sub>2</sub>の透気を確認した後、上下端面を共に10MPaで安定させてから三軸圧縮試験を実施した。なお、供試体への水・CO<sub>2</sub>の供給は、圧力もしくは流量で供試体端面に作用する流体圧を制御することが可能なシリンジポンプ（ISCO社製D500、最大圧力25MPa）で、図-4に示すバルブ類を操作して行った。



(a) 珪藻質泥岩-声間層



(b) 硬質頁岩-稚内層

図-2 幌延珪藻質岩石の電子顕微鏡写真

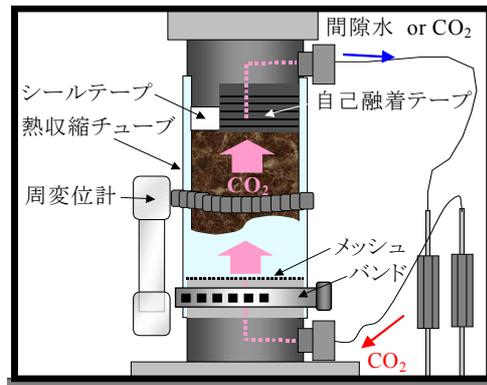


図-3 三軸セル内における供試体の被覆状況と流体経路

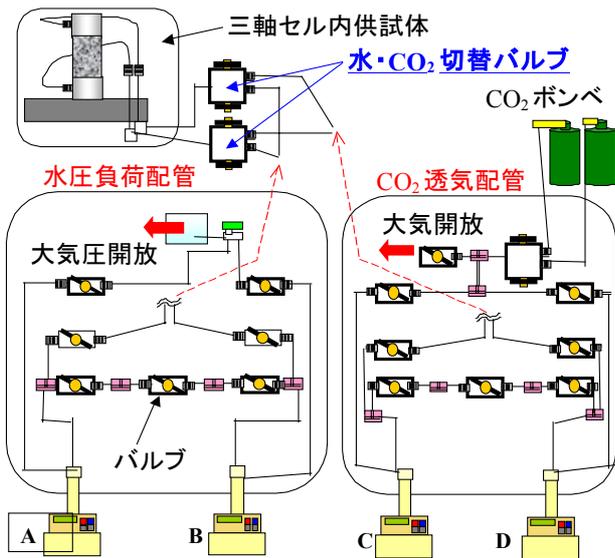


図-4 間隙流体調整用バルブ類配管概略図

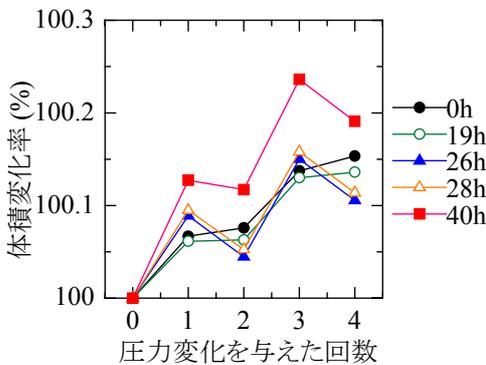


図-5 CO<sub>2</sub>圧入中の体積弾性率の変化

#### (4) 上端面までのCO<sub>2</sub>透過確認

供試体下端面から圧入を開始後、CO<sub>2</sub>が上端面まで到達したことを確認する必要がある。この場合、载荷軸方向の弾性波速度変化のモニタリング<sup>3)</sup>が有効であると思われるが、今回は時間の制約上、シリンジポンプ内に存在する流体の体積弾性率の変化に着目し、CO<sub>2</sub>が排出される上端面ポンプの定常圧を変化させ、このときのシリンジポンプ内体積変化を記録した。

この確認作業の一例を図-5に示す。CO<sub>2</sub>圧入時の間隙水圧10MPaを基準に1分間隔で5回、シリンジポンプの圧力を50kPa上下させ、このときの体積を変化が落ち着いたところで記録した。なお、図中の体積変化率は、この値を計測開始時の体積で除した値である。同図より、CO<sub>2</sub>圧入開始時には鈍感だった圧力変化に対する体積変化が、徐々に増加したことがわかる。これは水より小さな体積弾性率を持つ超臨界状態のCO<sub>2</sub>が供試体上部端面から配管内に湧出したことを示している。

しかし、以上の測定方法では供試体を透過したCO<sub>2</sub>の定量が難しいため、現在、配管経路内でのCO<sub>2</sub>の確認す

る手法の確立を急いでいる。また、载荷軸方向の弾性波速度変化による確認も行う予定である。

#### (5) データ計測システム

载荷時のデータは、MTS社製制御ソフト Test star IIにより、パソコンに随時記録される。サンプリング周期や計測項目は、経過時間、軸荷重、軸変位、周変位、封圧など、任意に設定が可能である。供試体周辺における周変位やロードセルの出力は、三軸セル内から、封圧油に対する耐圧構造を有するフィードスルーを通じてセル外に配線され、計測機器に入力されている。これらは任意のチャンネルについて、アナログ出力が可能であり、前述のシリンジポンプデータ(圧力、流量、体積)や、低温恒温槽の水温とともに、別途用意されたパソコンに接続され、同一ファイルに記録される。

## 4. 試験結果

### (1) 一軸圧縮試験

三軸試験に先立って実施した一軸圧縮試験の結果を以下に示す。なお、本研究では上下のエンドピース間の変位を供試体長さで除した値を軸ひずみとみなし、周ひずみはMTS社製チェーン式ひずみ計を用いて計測している。ここでは、供試体の乾燥を防止するためにごく薄いラテックスゴムで被覆し、载荷速度を $2.0 \times 10^6$  /s(以下同様)に設定した。

表-2 一軸圧縮試験結果

一軸圧縮強さ	8.42 MPa	7.76 MPa
ヤング率	0.93 GPa	0.95 GPa
ポアソン比	—	0.11

### (2) 封圧と浸透率の関係

封圧2, 3, 6, 11 MPaの静水圧下で約12時間圧密させた後、トランジェントパルス法(近似解)に基いた透水試験<sup>4)</sup>を実施した。ここでは、式(1)により浸透率 $K$ を求め、封圧と浸透率の関係を調べた(図-6)。

$$K = \mu \cdot \beta \cdot V \frac{\ln \left( \frac{\Delta P_i}{\Delta P_f} \right)}{2\Delta t \left( \frac{A_s}{L_s} \right)} \quad (1)$$

ここで、 $V$ は貯留槽の体積、 $\Delta P_i / \Delta P_f$ は計測開始時と終了時の上下端面圧力差の比、 $\Delta t$ は計測時間、 $L_s$ は供試体長さ、 $A_s$ は供試体断面積、 $\mu$ は流体の粘性係数、 $\beta$ は間隙流体の圧縮率である。なお、圧密時の間隙水圧は1MPaとし、透水試験では瞬間的に一端面に1.1 MPa(圧

力勾配 0.1 MPa) の水圧を負荷し、直後にポンプを停止して間隙水圧の変化を観察した。これらを浸透方向を入れ替えて計 2 回実施し、その平均を結果に用いた。

ここでは、同一の試料を用いて 2 MPa から 11 MPa までの各設定値で測定した後、再び 2 MPa で計測を行った。

同図より、ここでは 11 MPa までの封圧増加に伴って浸透率が約 50% 低下したが、これを再び 2 MPa まで減圧しても、直後の浸透率には、ほとんどその影響が認められない。

### (3) 三軸試験の封圧条件

間隙水圧を 10 MPa に固定し、排水条件下で三軸試験を実施した。このとき、CO<sub>2</sub> を圧入しない試料（以下、含水飽和状態と表記する）では、封圧から間隙水圧を差引いた有効封圧を 2~20MPa に設定して 11 試験を実施した。その結果、有効封圧 15 MPa と 20 MPa の試験で、荷重が降伏せずに増加し続けるひずみ硬化がみられた。これを参考に、超臨界 CO<sub>2</sub> を圧入した試料について有効封圧 2~10 MPa で 6 試験を行った。

### (4) 応力ひずみ線図の比較

各封圧条件下で得られた軸差応力とひずみの関係を図-7 に示す。含水飽和状態では、残留強度状態までの荷重を 4 試験、破壊に伴う荷重の低下開始直後までの荷重を 5 試験、ひずみ硬化した 2 試験（前述）を行ったが、残留強度状態までの荷重結果を示した図-7(a) では有効封圧の増加量とほぼ等間隔で強度が増加した。この傾向は破壊直後に荷重を停止した試験でも同様だった。一方、超臨界 CO<sub>2</sub> 圧入後の三軸試験では、6 試験中 1 試験がひずみ硬化した。残り 5 試験では荷重低下直後に荷重を停止したが、ここでも同様に、封圧の増加に伴う等間隔で強度増加がみられた。以上のように、両者の応力ひずみ線図には、際立って大きな差異は認められない。なお、これらの図では荷重時の挙動を比較するため、各有効封圧下における荷重直前のひずみを原点に表記した。

### (5) 各物性値の比較

図-8 および図-9 に、上記の力学試験のデータからピーク強度、50%接線ヤング率、50%接線ポアソン比を求め、含水飽和状態と CO<sub>2</sub> 注入状態で比較した結果を示す。

軸差応力で示したピーク強度と有効封圧の関係では、強度に対する CO<sub>2</sub> の影響は認められず、すべてのデータがほぼ同一直線状にプロットされている。一方、ヤング率は封圧の増加に伴って減少する傾向があるが、CO<sub>2</sub> 圧入後は含水飽和状態より小さい値を示した。この傾向は、低い有効封圧で特に顕著で、ひずみ硬化の生じる以前の 10MPa 前後ではほぼ一致した。ポアソン比は封圧の増加や CO<sub>2</sub> の有無に影響せず、概ね 0.12~0.18 で推移した。

図-10 に、最大主応力（ピーク強度の有効応力）と最小主応力（有効封圧）を用いてあらわした Mohr の破壊応力円と線形近似した破壊包絡線を示す。それぞれの破壊包絡線は、含水飽和状態で、

$$\tau = 0.34 \cdot \sigma + 3.6 \quad (2)$$

CO<sub>2</sub> 圧入後の供試体で、

$$\tau = 0.41 \cdot \sigma + 2.9 \quad (3)$$

となった。ここで、 $\tau$  はせん断応力、 $\sigma$  は直応力を示す。

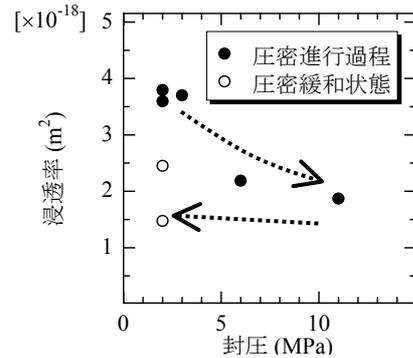
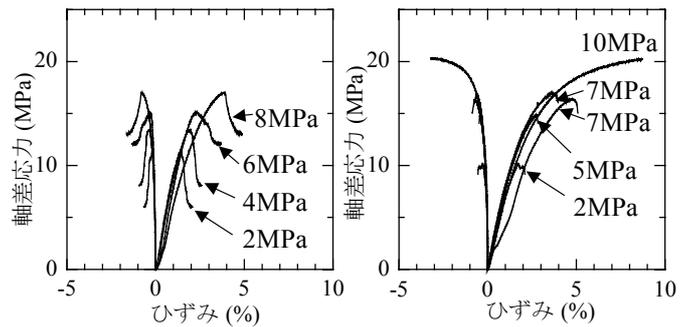


図-6 封圧と浸透率の関係



(a) 含水飽和状態 (b) CO<sub>2</sub> 圧入状態

図-7 応力ひずみ線図

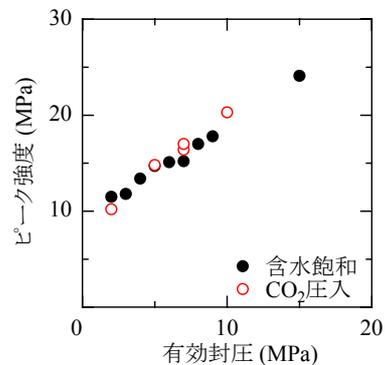


図-8 ピーク強度と有効封圧の関係

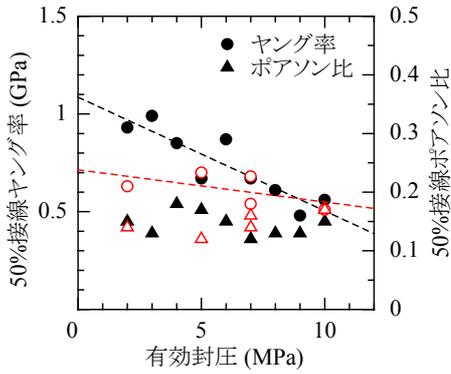


図-9 50%接線ヤング率・50%接線ポアソン比と有効封圧の関係（塗潰し-含水飽和，白抜き-CO<sub>2</sub>圧入）

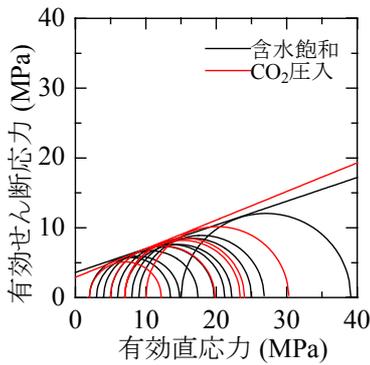


図-10 有効応力を用いた Mohr 円と破壊包絡線

## 5. 考察

### (1) 破断面の形状に関して

破壊直後に試験を停止した各試験の供試体を対象に、ROLAND 社製 MDX-20 により、破断面中央部 20 mm 角の領域を測定の対象とし、縦横 0.1 mm 間隔でデータ化した。なお、計測は試料が乾燥によって劣化しないよう、水を満たした容器内で行った。図-11 に取得した破断面データによる再現画像の一例を示す。x 方向が破断面の長辺方向であるが、CO<sub>2</sub> を圧入した試料ではこの方向に沿った凹凸があるようにみられた。

このデータを用いて、バリオグラム法に基づくフラクタルモデルから岩盤不連続面の表面粗さを評価した村田、齊藤<sup>5)</sup> にならい、スティーブネス  $V$  とフラクタル次元  $D$  を算出した（図-12）。これらはセミバリオグラム関数  $\gamma(h)$  を求める、距離  $h$  にある 2 点の高さ  $z(x_i)$ ,  $z(x_i+h)$  の差を用いた式(4)と、式(5)より導出される。

$$\gamma(h) = \frac{1}{2N} \sum_{i=1}^N [z(x_i) - z(x_i+h)]^2 \quad (4)$$

$$\gamma(h) = Vh^{2H} \quad (0 < H < 1) \quad (5)$$

ただし、 $N$  はデータ間距離が  $h$  となるペアの数、 $H$  は

Hurst 指数であり、 $D = 2 - H$  で与えられる。

図-12 より、x 方向 1 試料を除き、CO<sub>2</sub> 圧入により、僅かに表面形状が粗くなる傾向がみられる。これより、現段階では、強度には影響が認められないが、岩石内部では何らかの CO<sub>2</sub> 圧入による影響が生じている可能性がある。なお、フラクタル次元には CO<sub>2</sub> 圧入による変化は認められない。

### (2) 破断面の角度に関して

供試体に生じた破断面の载荷軸からの角度（以下、破断角）と有効封圧の関係を図-13 に示す。相関は低いが、CO<sub>2</sub> 圧入により破断角が増大している。この時、破壊面が供試体上部、つまり CO<sub>2</sub> 排出側で破壊が生じる傾向があった。これについては CO<sub>2</sub> の分布状況が原因している可能性があるが、現段階では原因を特定できない。

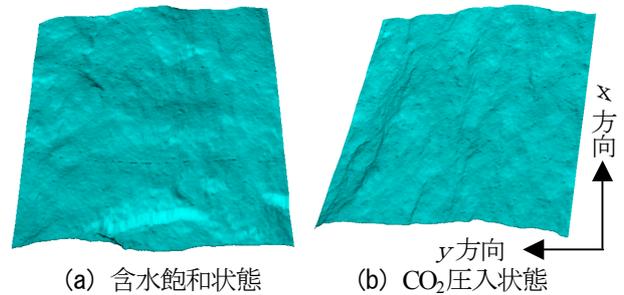


図-11 再現された破断面の画像

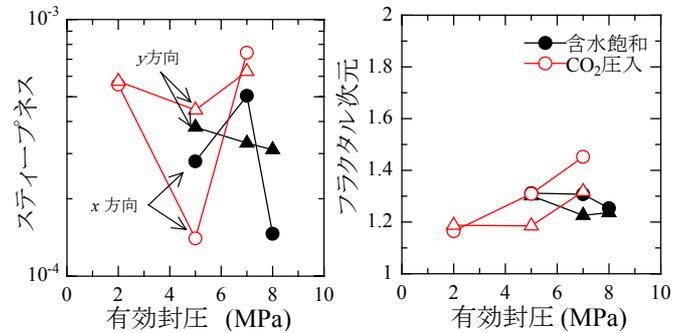


図-12 有効封圧とスティーブネス・フラクタル次元

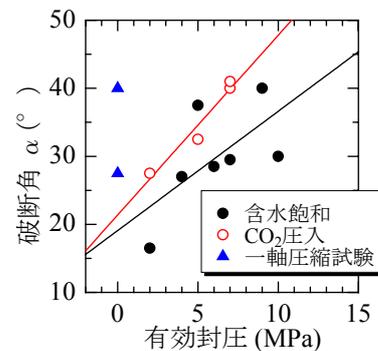


図-13 破断角と有効封圧の関係

### (3) ヤング率の変化について

CO<sub>2</sub>の圧入によりヤング率は減少傾向にあった。この傾向は有効封圧が大きい場合に小さいが、さほど大きな圧密を受けない低封圧では顕著である。比較的空隙率の大きい材料では Poroelectricity (間隙弾性論) の概念に大きく左右される<sup>9)</sup>ため、間隙流体の体積弾性率の差異がヤング率に影響したものと考えられる。封圧の増加に伴いこの傾向が弱くなったことに関しては、圧密の進行により、空隙が狭まったためと思われる。

### (4) 現段階での課題・問題点

試験後、封圧用オイルを回収する際、油が発泡した状態で回収された。シリンジポンプでは水の漏洩による異常が認められないことから、この原因はシリコンジャケットからのCO<sub>2</sub>の透過と思われる。また、ここではデータを示していないが、CO<sub>2</sub>圧入開始から10時間程度で岩石またはシリコンジャケットへCO<sub>2</sub>の吸着が原因と思われる明瞭な周ひずみ増加が確認された。これらシリコンへのCO<sub>2</sub>の吸収・透過に対して、ジャケット内側にフィルムを挟む対策を検討している。なお、載荷時の試験結果へのジャケット膨張の影響であるが、圧密中に膨張し、図-9におけるCO<sub>2</sub>透過後のポアソン比が過大評価されているとしても、含水飽和状態のそれとほぼ同程度であるため、オーダーレベルの誤差は生じないと判断できる。上述の膨張挙動に関しては、本文中にデータを示していないが、弾性波速度の測定により、供試体内部における浸透状況の把握につとめたい。

## 6. 結言

超臨界CO<sub>2</sub>を圧入した岩石の三軸試験に関する基礎的な知見を得るため、試験には幌延町周辺に産出する硬質

頁岩(稚内層)を用いて、間隙圧10MPa、温度40°Cの条件下で、有効封圧を2MPaから20MPaまで変化させ、含水飽和状態の供試体と、これにCO<sub>2</sub>を下端面から圧入した供試体で結果を比較した。

その結果、破壊強度にはCO<sub>2</sub>注入による影響はみられなかったが、低有効封圧でのヤング率の減少と、破断面形状の変化、破断角の増大が確認された。これらは間隙流体が水からCO<sub>2</sub>に変化したことで生じたと思われるが、劣化の程度等に関しては、CO<sub>2</sub>の透過経路を明らかにするなど、更なる研究を進める必要がある。

**謝辞:** 破断面形状の解析では北海道大学岩盤力学研究室 藤井義明教授のご協力を得た。硬質頁岩ブロックは豊富町佐藤産業株式会社より頂いた。

### 参考文献

- 1) 小玉齊明, 赤川敏, 藤井義明: 数種の岩石の凍結融解および凍上に伴う変形挙動, 第35回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集 講演番号50, pp.271-276, 2006.
- 2) 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: 平成16年地圏環境研究事業研究成果報告書, p.31, 2005.
- 3) 薛自求, 大隅多加志, 二酸化炭素注入に伴う多孔質砂岩の透過係数と弾性波速度の測定に関する実験的研究, 資源と素材, Vol.120, pp.91-98, 2004.
- 4) MTS Systems Corporation: MTS Rock and Concrete Mechanics Testing Systems Technical Description, P.256, 2002.
- 5) 村田澄彦, 齊藤敏明: フラクタルモデルによる岩盤不連続面の表面粗さ評価法について, 資源と素材, Vol.113, pp.555-560, 1997.
- 6) 木山保, 松井裕哉, J.C.Roegiers, 熊倉聡, 小玉齊明, 石島洋二: 間隙弾性論に基づく幌延の珪藻岩を用いた室内試験, 第35回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集 講演番号55, pp.297-298, 2006.

## EXPERIMENTAL STUDY ON THE EVALUATION OF THE EFFECT OF SUPER CRITICAL CO<sub>2</sub> TO THE MECHANICAL PROPERTIES OF DIATOMITE

Nariaki KODAMA, Tamotu KIYAMA, Ziqiu XUE, Satoshi KUMAKURA,  
Soushi NISHIMOTO and Yoji ISHIJIMA

Considering the low permeability of Horonobe diatomite as that of the cap rock in CO<sub>2</sub> geological sequestration sites, the effects of the super critical CO<sub>2</sub> injection on the mechanical properties of this rock were investigated through triaxial tests. The pore pressure and the temperature were set at 10 MPa and 40°C in order to keep the CO<sub>2</sub> in super critical condition. And, the effective confining pressure was set between 2 to 20 MPa. As a result, it was found that Young's modulus decreased and that the steepness of the fracture surface and fracture degrees increased, though strength and Poisson's ratio did not show any obvious changes.