

超臨界二酸化炭素と水の相対浸透率測定

定常法により測定した相対浸透率と弾性波速度

小川 豊和^{*1}・横山 正利^{*2}

Keywords : supercritical CO₂, two-phase flow, relative permeability, saturation, sandstone

超臨界CO₂, 2相流, 相対浸透率, 飽和度, 砂岩

1. はじめに

地球温暖化ガス削減策の一つとして最近注目されている CCS(Carbon dioxide Capture and Storage : 分離回収した二酸化炭素を地中に封じ込める技術)では、環境影響評価の観点から安全を保证するためのモニタリング技術や、貯留された二酸化炭素の挙動を正しく予測できる技術の開発が欠かせない。現象の理解や解析の精度向上を目指す上で、水と二酸化炭素の相対浸透率や対象地盤の圧入性など、地盤の基本物性パラメータの把握に寄与する実験技術が非常に重要であると考えられる。

このため筆者らは、岩石コアを用いて 2 相流（超臨界状態の二酸化炭素と水）の相対浸透率を求める実験システムの構築を平成 20 年度から継続している。そして、その成果をこれまで大成建設技術センター報で報告してきた：国内外における CCS の取り組みの現状と必要技術、当社が取り組む数値解析技術の紹介¹⁾；超臨界二酸化炭素の可視化装置・相対浸透率測定基本システムの構築²⁾；そして、試料から排出される水と二酸化炭素の積算流量比を測定するセパレータの原理と非定常法による相対浸透率の測定結果の紹介³⁾である。

ここではまず、試験時に同時に計測した P 波・S 波速度測定結果を用いて、二酸化炭素の飽和度変化を確認した結果を報告する。そして、水で飽和した 2 種類の砂岩に、予め量比が既知の超臨界状態の二酸化炭素と水を圧入する、定常法による 2 相流浸透試験結果について述べる。最後に、定常法の計測結果を非定常法によるものと比較して、構築した実験システムの有効性と今後の課題について整理する。

2. 定常法による相対浸透率測定

2.1 弾性波速度測定による二酸化炭素の飽和度推定

図-1 に、定常法で試験を行う場合のイメージ図を示す。最新のレイアウトでは、装置全体を、組み立てたアングルと発泡スチロールの壁で囲い、温水循環器と温風器を併用した制御により、±1℃の精度で常温～60℃程度の温度環境で試験が実施できるシステムとなっている。

定常法では、予め量比が既知の超臨界状態の二酸化炭素と水を、水で飽和した岩石試料に同時に圧入する。そのため、2 相流れが定常状態に達した場合、試料内の二酸化炭素の飽和度は、圧入する 2 流体の量比で決定できるはずである。しかし、実験上はそれが成り立つかどうか何らかの方法で検証する必要がある。その目的を満たすため、ここでは、岩石試料の上下ペデスタルに圧電素子型の P 波・S 波速度センサーを取り付けて弾性波速度を測定した^{4), 5), 6)}。そして P 波・S 波速度と二酸化炭素の飽和度の理論的關係⁷⁾から岩石の飽和度を推定して、実際与えている飽和度と整合するかどうか検証した。

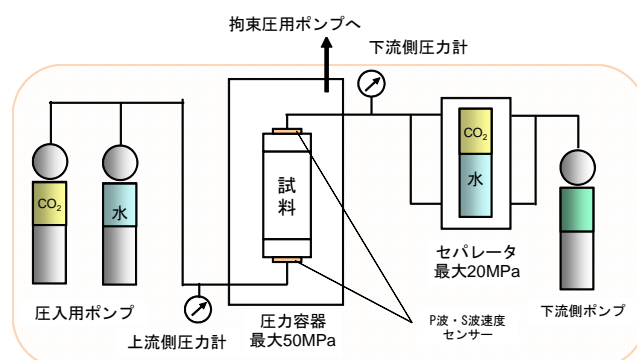


図-1 定常法浸透試験装置イメージ図

Fig.1 Schematic diagramme of rock permeability test apparatus for steady-state method

* 1 技術センター土木技術研究所地盤・岩盤研究室

* 2 大成サービス(株)

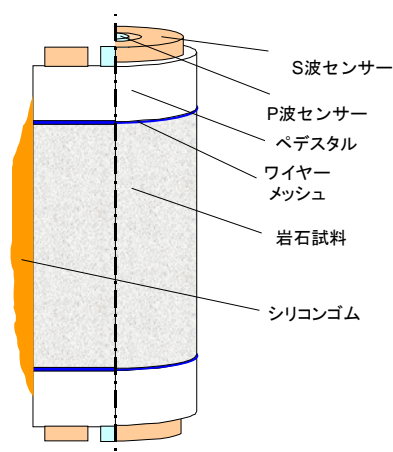


図-2 P波・S波センサー取り付けの模式図

Fig.2 Schematic view of piezometric transducer arrangements for P- and S-wave velocity measurement

弾性波速度測定のためにペDESTALに設置したP波・S波センサーの取り付け模式図を図-2に示す。間隙流体の流れを一様にし、ペDESTALと試料間の毛管力を切るために、ワイヤーメッシュを用い、ペDESTALには放射状と半径方向に溝が切っている。P波・S波センサーには、固有振動数が0.5MHzの圧電素子を使用しており、P波は圧縮波を、S波はねじり波を利用して、透過法により岩石試料のバルク速度を測定する。なお、ここでは岩石試料の上下にセンサーを設置しているが、試料側面に複数組設置することで、二酸化炭素の流れと共に鉛直方向で生じる速度変化をモニタリングすることができる⁸⁾。

図-3に、ベレア砂岩試料(B-100-15)について、試験で圧入した二酸化炭素と水の量比から単純に計算した二酸化炭素の飽和度(定常状態になった後の値)と、その時測定したP波・S波速度の関係(Δ と \times で表示)を、岩石モデルから理論的に計算した弾性波速度と二酸化炭素の飽和度の関係(実線で表示)と比較している。理論値の計算では、モデルの流体置換の影響はガスマンの式で近似することができ、間隙流体の分布は一様な場合とパッチー⁹⁾な場合を考え¹⁾、観測値とより整合する結果を考慮することとした。また、試料がほぼ均一で、主要構成鉱物がクリーンな石英であることから、以下の値を仮定した。すなわち、岩石の間隙率0.18(実測値)、岩石構成鉱物の密度2.70g/cc、浸透試験時の温度圧力状態で、水の密度1.0g/cc、

¹⁾ 「一様」とは、岩石試料の中を全断面に対して同じ速度で流体が移動する場合を(すなわち、流体フロントがはっきりしている)、「パッチー」とは、試料内の流体分布が不均一で混ざり合っている場合を指す。

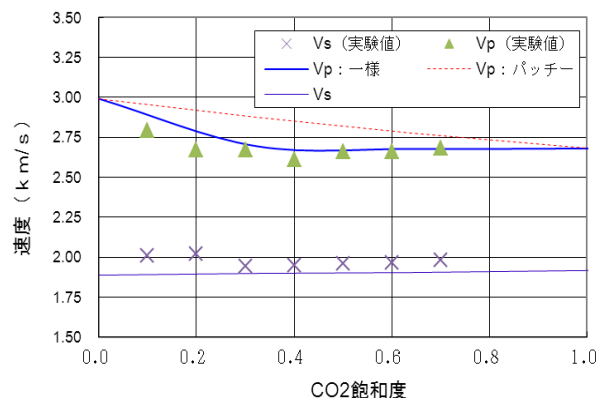


図-3 試験で用いた二酸化炭素の飽和度と理論値との比較

Fig.3 Comparison of CO₂ saturation used in the experiment with the theoretical value (B-100-15)

二酸化炭素の密度0.60g/cc、岩石のせん断弾性係数8.5GPa、乾燥状態の岩石の体積弾性係数5GPa、鉱物の体積弾性係数20GPa、水の体積弾性係数2.2GPa、二酸化炭素の体積弾性係数0.1GPaである。

図より、この試料については試料内の流体分布を一様と考えたと両者がよく整合していることがうかがえる。これ以外の試験についても、同様の仮定をすれば、実際に試験で用いた飽和度を理論的に検証できる。また逆に、弾性波の挙動を観察することで、試験における流体挙動が定常状態に達したかどうかとも推測できると考えられる。

2.2 定常法による相対浸透率の測定

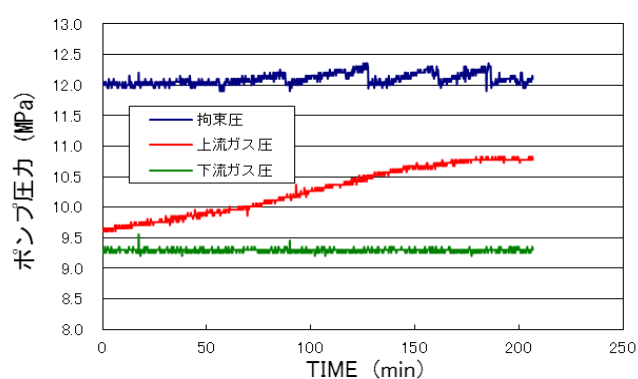
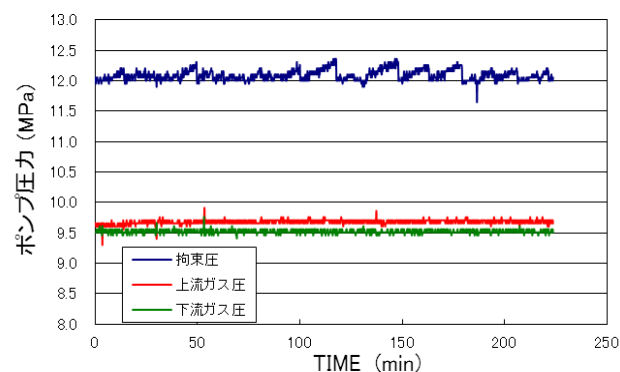
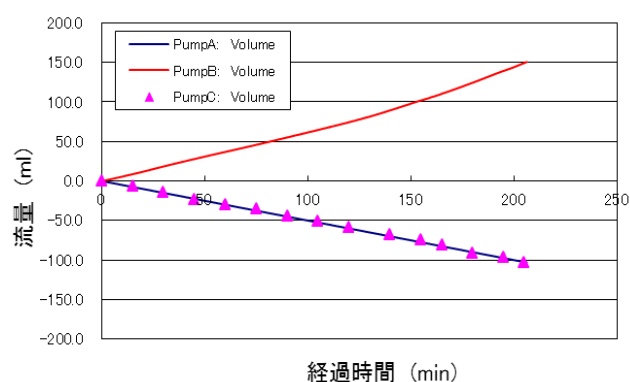
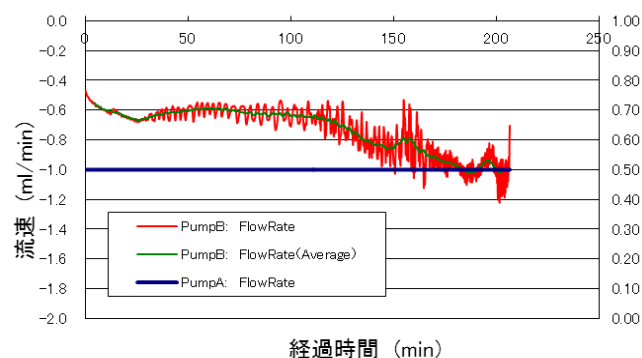
表-1に、定常法による超臨界状態の二酸化炭素と水の2相流の定常法相対浸透率測定に用いた岩石試料をまとめた。試験には、多胡砂岩とベレア砂岩の2種類の砂岩を用いた。圧入は、二酸化炭素を超臨界状態に保つため、温度42℃、拘束圧12.0MPa、下流側の圧力を9.5MPaに維持して、上流側から二酸化炭素と水の積算量が毎分1ccの割合で実施した。圧入は、最初水で飽和した試料の温度、続いて圧力を所定の値に設定したあと、二酸化炭素の量比を全ての試料について10%から開始し、T-100-14については20、30、40、60%の5段階で、T-100-19については20、30、50、70%の5段階で、B-100-15については10%ずつ増加させて70%までの7段階で、そして、T-100-15とB-100-16については相対浸透率のヒステリシスを調べるために、30、50、70、50、30%の6段階で下流側の水と二酸化炭素の積算量と弾性波速度の値から定常状態が確認されるまで実施した(1段階での圧入時間は約200分)。

以下に、実験で得られた圧力の経時変化については

表-1 定常法による相対浸透率測定に用いた岩石試料

Table1 Rock samples used in steady-state permeability tests

岩種	サンプルNo.	直径 (mm)	高さ (mm)	密度 (g/cc)	間隙率	圧入速度 (cc/min)	備考 (二酸化炭素の量比)
多胡砂岩	T-100-14	49.2	100.4	1.98	0.229	1.0	10, 20, 30, 40, 60%
	T-100-15	49.1	100.4	1.99	0.220	1.0	10, 30, 50, 70, 50, 30%
	T-100-19	49.2	100.4	1.99	0.222	1.0	10, 20, 30, 50, 70%
ベレア砂岩	B-100-15	49.5	100.3	2.15	0.183	1.0	10, 20, 30, 40, 50, 60, 70%
	B-100-16	49.5	100.5	2.15	0.182	1.0	10, 30, 50, 70, 50, 30%

図-4 定常法浸透試験中の圧力の経時変化 (試料 T-100-15, CO₂ 量比 50%)Fig.4 Variation in pressures with time during steady-state relative permeability test (Sa.:T-100-15, %CO₂=50)図-5 定常法浸透試験中の圧力の経時変化 (試料 B-100-16, CO₂ 量比 50%)Fig.5 Variation in pressures with time during steady-state relative permeability test (Sa.:B-100-16, %CO₂=50)図-6 定常法浸透試験中の積算流量の経時変化 (試料 T-100-15, CO₂ 量比 50%)Fig.6 Variation in cumulative effluent volume with time during steady-state relative permeability test (Sa.:T-100-15, %CO₂=50)図-7 定常法浸透試験中の流速の経時変化 (試料 T-100-15, CO₂ 量比 50%)Fig.7 Variation in flux with time during steady-state relative permeability test (Sa.:T-100-15, %CO₂=50)

2つの異なる岩石試料について、それ以外の諸量については全ての試料についてほぼ同じ傾向なので多胡砂岩のみについて結果を報告する。

図-4は、多胡砂岩 (T-100-15) について、拘束圧と下流側の圧力を一定に保ち、二酸化炭素と水の量比が 50% : 50% の流体を毎分 1ml の割合で圧入した場合の、

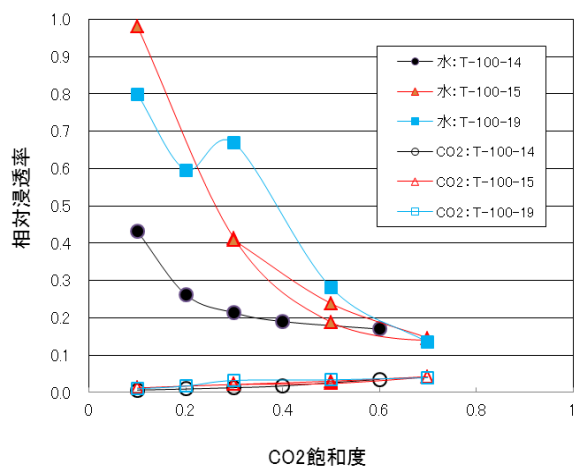


図-8 二酸化炭素の飽和度と相対浸透率の関係（多胡砂岩）

Fig.8 Relationship between relative permeability and CO₂ saturation (Tako sandstone)

上流側圧力の経時変化を示す。上流側圧力は9.5MPaから圧入開始とともに増加し、約180分後に最大値（定常値）の10.8MPaに至る。試験を終了した210分後まで上部圧力は一定値を保持している。

図-5は、ベレア砂岩（B-100-16）について、拘束圧と下流側の圧力を一定に保ち、二酸化炭素と水の量比が50%：50%の流体を毎分1mlの割合で圧入した場合の、上流側圧力の経時変化を示したものである。図-3とは大きく異なり、上流側圧力は9.5MPaから圧入開始直後に最大値（定常値）の9.7MPaに至る。その後、試験を終了した210分後まで上部圧力はほぼ一定値を保持している。これは、多胡砂岩と比較するとベレア砂岩の方がより均一で、浸透率もより大きいため、上流側の圧力増加も小さくなり、定常状態に達する時間も短くなると考えられる。

図-6は、T-100-15について、拘束圧と下流側の圧力を一定に保ち、二酸化炭素と水の量比が50%：50%の流体を毎分1mlの割合で圧入した場合の、間隙流体の積算流量の経時変化を示す。ポンプA（二酸化炭素）とポンプC（水：△で表示）の量比はポンプのシリンダー内の量が減少するため負の値で示している。また、赤線の下流側の積算流量は、ポンプ内に流体が流入するので正の値で示している。本来であればこの量は、（水の圧入量＋二酸化炭素の圧入量－水に溶解する二酸化炭素量）に等しくなるはずであるが、この試験ではこれが下に凸の形をしている。それは、図-4で示したようにこの実験では圧力が定常値に達するまでに時間を要し、圧力が増加している間はこの量は抑えられているが、圧力が安定するとその値を回復する

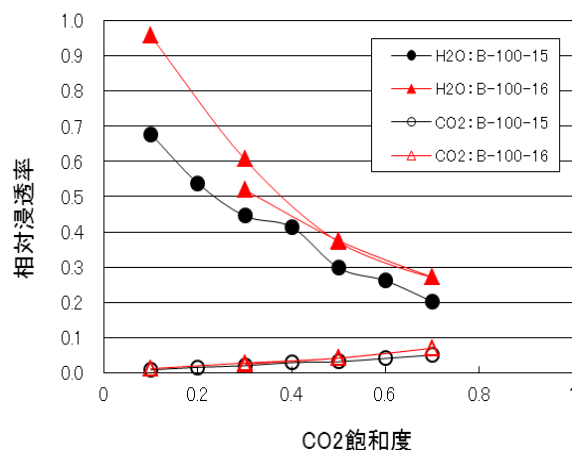


図-9 二酸化炭素の飽和度と相対浸透率の関係（ベレア砂岩）

Fig.9 Relationship between relative permeability and CO₂ saturation (Berea sandstone)

方向にあるからである。試料が均一な砂岩であると仮定すると、これは、圧入により上流側の圧力が増加したことで二酸化炭素が下流側より大きな圧力で圧縮され、体積が減少して一時的に岩石コア内に貯留されているためであると考えられる。ここでは限られた数の試験のみ実施しているが、より多くのデータを蓄積することでさらに明らかになると考えられる。

図-7は、T-100-15について上流側と下流側の流速の経時変化の一例を示している。太い青線が制御した上流側の流速で、赤の線が下流側の流速を示す。図-3、図-5で示したように、圧力が増加して下流側の積算流量が一時的に抑えられている間は、下流側の流速は、二酸化炭素の水への溶解を考慮した0.95ml/minより小さいが、圧力、流量が定常状態に至るにつれ漸近的に理論値に近づいていると考えられる。

2.3 相対浸透率測定結果

図-8に多胡砂岩の、そして図-9にベレア砂岩の超臨界状態の二酸化炭素と水の相対浸透率測定結果を示す。本来であれば、それぞれの試料に対して絶対浸透率を確立し、2相流の相対浸透率を検討すべきであるが、これらの図の準備に当たっては、これまでの試験で水100%、あるいは超臨界状態の二酸化炭素が100%の流体を圧入して予測したそれぞれの岩石の絶対浸透率の代表値²⁾（多胡砂岩： $4.76 \times 10^{-16} \text{ m}^2$ 、ベレア砂岩： $2.38 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ ）に基づいて相対浸透率を計算している。

水の相対浸透率は二酸化炭素の飽和度の増加と共に減少し、逆に超臨界二酸化炭素の相対浸透率は漸増していることが分かる。実験を行った二酸化炭素の飽和

度が70%以下の領域では、二酸化炭素の相対浸透率は全ての試験で整合する結果が得られており、値はそれほど大きくない。また、これは既往の文献値¹⁰⁾とも整合しており、二酸化炭素の割合がかなり高くなるまで、二酸化炭素が流れにくい（現場での適用では圧入しづらい）と推測される。それは、二酸化炭素の飽和度が低い領域では、二酸化炭素が流れるために、二酸化炭素の流動特性がそれより粘性の高い水の流動特性に大きく影響されているためであると考えられる。二酸化炭素の飽和度が大きくなるにつれて水の粘性の影響は少なくなると予想される。よって、試験では、二酸化炭素の飽和度が低い場合、間隙流体の流れが定常状態に達するまでに時間がかかることもありうる。なお、実験では二酸化炭素の飽和度が70%を超える領域でのデータが得られていない。これは、非定常法の数値モデルで予測した二酸化炭素の相対浸透率が、飽和度40%以上では大きく変化すると予想されたため（図-9参照）、便宜的に70%までの試験を計画したためであった。今後の試験では、二酸化炭素の飽和度がより高い領域での測定が必要と思われる。

今回実施した、2 試料（T-100-15 と B-100-16）については、相対浸透率に大きなヒステリシスは見受けられなかった。試験の数を増やして再検討する必要がある。

3. まとめと今後の課題

この報告では、2 種類の砂岩試料を用いて実施した、定常法による超臨界状態の二酸化炭素と水の相対浸透率測定結果を示した。また、実験中に同時に実施した P 波・S 波の速度測定結果より、岩石試料の、二酸化炭素の飽和度推定について言及した。これらより、以下のまとめと結論が導かれる。

- 1) 最新の測定システムでは、温水循環器と温風器を併用した制御により、 $\pm 1^{\circ}\text{C}$ の精度で常温～ 60°C 程度の温度環境で試験が実施できる。
- 2) 試験で圧入した二酸化炭素と水の量比から計算した二酸化炭素の飽和度と、その時測定した P 波・S 波速度の関係を、岩石モデルから理論的に計算した弾性波速度と二酸化炭素の飽和度の関係を比較して、弾性波速度を測定することで、試料内の二酸化炭素の飽和度が推定できるかどうか検討した。その結果、試料内の流体分布を一様と考えると両者がよく整合していることがわかった。また、弾性波の挙動を観察することで、試験における流体挙動が定常状態に達したかどうか推測できる可能性がある。
- 3) 拘束圧と下流側の圧力を一定に保ち、既知の量比・流速で二酸化炭素と水を圧入すると、上流側圧力は初期値から最大値（定常値）に至る。圧力の増加分、定常に至るまでの時間は、考慮する岩石の流動特性に依存する。
- 4) 水の相対浸透率は二酸化炭素の飽和度の増加と共に減少し、逆に超臨界二酸化炭素の相対浸透率は漸増する。二酸化炭素の飽和度が小さい領域では、二酸化炭素の相対浸透率は小さい。そのため、二酸化炭素の割合がかなり高くなるまで、二酸化炭素が流れにくい（現場での適用では圧入しづらい）と推測される。

また、今後の研究では、以下の課題に取り組む必要があると考えられる。

- i. 二酸化炭素の飽和度が高い値での浸透試験：既往の試験結果の検討から、今回の検討では、二酸化炭素の飽和度の最大値を70%として実験的検討を行った。しかし、得られた二酸化炭素の相対浸透率は小さな値であった。今後、70%以上の高い飽和度での試験を行い、検討することが望まれる。
- ii. 非定常法と定常法の整合性：非定常法のモデルを使った相対浸透率の推定値との比較では、今回、水の相対浸透率のばらつきが大きかった。また、二酸化炭素の飽和度が高い領域では、非定常法による推定より大きな値が得られた。試験数を増やして、詳細な検討が必要と考える。
- iii. 絶対浸透率：今回は、2 つの異なる岩石に対して、代表的な値を用いて相対浸透率の検討を行った。今後はそれぞれの試料についての絶対浸透率を測定し、より正確な相対浸透率の評価をする必要がある。
- iv. キャピラリー数、重力数の影響に関する検討：今回は、代表的な温度圧力状態と、ある流速を用いた試験結果を報告した。今後、流速、温度、圧力を変化させて、さらに広範囲での相対浸透率の検討が望まれるところである。

参考文献

- 1) 小川豊和、青木智幸：二酸化炭素地中貯留に関する技術の現状と動向、大成建設技術センター報、No.41、2008。
- 2) 小川豊和、横山正利：超臨界二酸化炭素浸透実験装置の開発、大成建設技術センター報、No.42、2009。

- 3) 小川豊和, 青木智幸, 横山正利: 超臨界二酸化炭素と水の相対浸透率測定, 大成建設技術センター報, No.43, 2010.
- 4) 加藤文人, 小川豊和, 小野塚重信, 河野文夫: 岩石コアの弾性波速度と油層特性との関係に関する検討, 105 回物理探査学会学術講演会, 2001.
- 5) 小川豊和, 松井裕哉: 拘束圧下における幌延堆積岩の弾性波速度測定, 土木学会年次学術講演会, 2004.
- 6) 小川豊和, 今村聡: 超臨界 CO₂ の相対浸透率と弾性波速度の測定, 電力土木, No. 351, pp. 86-90, 2011.
- 7) 小川豊和: 二酸化炭素の飽和度と弾性波速度の関係, 物理探査 (投稿準備中) .
- 8) 薛自求, 大隅多加志: 二酸化炭素注入に伴う多孔質岩の透気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.
- 9) 例えば, Mavko, G., Mukerji, T., and Dvorkin, J.: The rock physics handbook, Cambridge University Press, 1998.
- 10) Benson, S.: <http://pangea.stanford.edu/research/bensonlab/index.html>