

平成 30 年 6 月 22 日現在

機関番号：82114

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06637

研究課題名(和文) 圧入ガスの置換によるシェールガス増進回収メカニズムの解明

研究課題名(英文) Clarifying the mechanism of enhanced shale gas recovery by displacement of gas injection

研究代表者

尾西 恭亮 (Kyosuke, Onishi)

国立研究開発法人土木研究所・土木研究所(つくば中央研究所)・研究員

研究者番号：20402969

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：ガス置換によるシェールガスの増進回収メカニズムの解明を最終目標とし、頁岩試料の分析により、各種物性値とガス吸着可能量の関係を明らかにすることを目的とした。女川層の珪質頁岩試料を5点採用した。ガス吸着量を、高圧下と低圧下の2つの方式で測定した。また、水銀ポロシメータで細孔径分布を測定し、ロックエバルで全有機炭素を測定した。ミクロ孔領域内のウルトラミクロ孔と吸着能力の間に有意な相関が得られ、このことからミクロ孔が高圧ガス吸着能力に大きな影響を与えていることが示された。一方、全有機炭素と吸着能力の間では相関を見出すことができなかった。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study is to clarify the relationships between maximum amount of adsorbed gas and physical properties by the analysis of shale samples. The final goal of this study is to clarify the mechanism of shale gas recovery by displacement of gas injection. We selected five siliceous shale samples of Onnagawa formation. The amount of gas adsorption was measured by two ways in the condition of high pressure and low pressure. Distributions of radius of micro pores were measured by a mercury porosimeter and total organic carbon was measured by Rock Eval. Fine correlation is found in between ultra-micro pores in micro pores and adsorption capacity, which indicates micro pores influence the amount of gas adsorption in high pressure. We cannot find any relationships between total organic carbon and adsorption capacity.

研究分野：油層工学

キーワード：シェールガス 吸着 頁岩 細孔径分布

1. 研究開始当初の背景

(1) 米国内のシェールガスの増産によるガス価格の低下と安定供給は、米国内への製造業の回帰を促進させている。世界全体のシェールガス推定埋蔵量は従来型の構造的天然ガスに匹敵し、全ての大陸に存在が確認されているため、エネルギー供給リスクの分散が可能である。技術立国である日本の経済力維持のためには、安価なエネルギー資源の安定供給が不可欠であり、特徴ある独自のシェールガス開発技術の保有により、開発権益の拡大を図ることが有効かつ重要である。

(2) シェールガスの約6割は、従来の構造的天然ガスと同様に、岩石の孔隙内に遊離ガスとして貯留しており、米国が開発に成功した水平坑井および多段フラクチャリング技術等を用いることにより、従来の天然ガスと似たような生産管理をすることが可能である。しかし、残り4割の吸着により貯留していると考えられているシェールガスを戦略的に生産する手法は実用化されていない。

(3) 現在、北米で開発に成功しているシェールガス貯留層は、生産条件の良い地層であり、今後、世界中のシェールガス開発を安定して進めていくためには、吸着ガスの回収率を高める生産手法の活用が重要となる。現在のシェールガス生産手法では、吸着ガスは生産開始後数年経過した後ようやく生産回収が開始されるため、投資回収効果は低い。しかし、吸着ガスも生産回収が始まると十分な価格競争力を有することが判明しており、戦略的な生産手法の開発が望まれている。

(4) 岩石中の吸着ガスの脱着流動メカニズムの解明は、先行して行われてきた石炭炭層中の天然ガス(コールベッドメタン)の開発研究により、基礎的な知見がもたらされている。しかし、頁岩(シェール)の吸着メカニズムは石炭よりも複雑なことが分かってきた。石炭や泥岩の吸着ガスの脱着流動シミュレーションおよび現象理解のための室内試験、特にガス吸着可能量の測定手法は、頁岩試料に対しても、有効な試験方法であり応用が可能である。炭層メタンでは、窒素や二酸化炭素の圧入によりメタンの脱着を促進し増進回収を図る生産手法が実用化されている。この生産手法のシェールガス開発への導入が求められている。

2. 研究の目的

(1) シェールガスは吸着ガス賦存量が一般的な貯留層よりも高いことが知られている。しかし、吸着ガスおよび測定上は区別が困難な吸収ガスが、シェールの微細孔隙の世界で、どのような形態で存在しているかは分析途上である。現段階では、各種岩石物性とガス吸着可能量との関係は不明点が多い。そこで、本研究では、頁岩試料の分析により、各種物性値とガス吸着可能量の関係を明らかにすることを目的とした。

(2) また、ガス置換によるシェールガスの増

進回収メカニズムの解明を最終目標とした。シェールガスの約4割を占める吸着貯留分を二酸化炭素などの他のガスの圧入により、より多く生産回収する方法を開発する。ガス置換によりメタンガスの吸着が生じるメカニズムを、比表面積、孔隙径分布、全有機炭素量の各測定結果と、ガス吸着可能量(吸着等温線)を比較することにより吸着メカニズムを解明する。

3. 研究の方法

(1) はじめに、日本の主要な油田の根源岩である女川層の露頭試料を採取する。採取した頁岩(シェール)試料を、真空状態で乾燥させる。乾燥試料を高圧容器に封入し、メタンガスを吸着飽和させる。採取試料のガス吸着可能量(吸着等温線)、比表面積、孔隙径分布、全有機炭素量を測定する。これらのガス吸着特性および細孔関連物性値から吸着ガスの脱着が促進されるメカニズムを解明する。

(2) また、吸着ガスを戦略的に生産する方向への移行が遅れているのは、現場試験記録の不足であると捉え、迅速な現場試験方法の検討を行った。そこで、密閉容器内にカッティングス状試料を入れ、脱着ガス量を測定する手法の精度評価を行った。また、増進回収法の評価試験を行う目的で、ナノ粒子による掃攻試験を行った。

4. 研究成果

(1) 秋田県内の露頭を複数調査し、実験に用いる珪質頁岩試料を5点選択採取した。ガス吸着量を、高圧下(5MPaまで)と低圧下の2つの方式で測定した。高圧下の吸着量の測定装置は安定した測定が可能ないように、改良を加えた。また、水銀ポロシメータとで細孔隙分布を測定し、ロックエバルで全有機炭素量を測定した。吸着量と細孔隙分布と全有機炭素の結果を比較し、関係性を議論した。

(2) 高圧下のガス吸着量の測定には二酸化炭素を用いた。装置の安定化により、ラングミュアの吸着等温線に従った測定結果を得られた。また、試料により、吸着量に4倍程度の差異が認められた。この吸着量の相違の原因が、全有機炭素であるという報告が北米産試料の分析において多数存在するが、女川珪質頁岩にはそのような傾向は認められなかった。一方、ミクロ孔の体積とは、比較的良好な相関を示した。メソ孔の体積とは、有意な相関性は認められなかった。本研究の結果からは、全有機炭素だけではなく、ミクロ孔の存在が高圧下のガス吸着量に大きな影響を与えていることが示唆される。

(3) 本研究では、女川層河床露頭より採取した5種類の珪質頁岩(K,Y,O,F,H)を用いた結果を示す(表1)。硬質の異なる組成の試料を確保することができた。TOCは平均的な女川層の値を示しているが、孔隙率や孔隙径分布や比表面積は大きく異なっている。XRFが

示す化学組成により珪質であることがわかる。また、XRDにより試料KのみオパールCTの存在が確認され、試料H,O,F,Yは続成度が進行していることが確認された。

(4) 次に、高压条件下(5MPまで)でCO₂吸着量を測定した(図2)。次に、低压窒素吸着法による吸脱着等温線、水銀圧入法による孔隙率や密度、X線回折分析(XRD)やX線蛍光分析(XRF)による鉱物化学組成の分析結果、および、全有機炭素(TOC)を総合的に分析し、マイクロ孔やメソ孔の高压ガス吸着能力との関係を議論した。低压窒素吸着法による吸脱着等温線の測定では、Horvath-Kawazoe法とSaito-Foley法によるマイクロ孔の解析を試み、BJH法によるメソ孔の解析を行った。

(5) これらの測定結果を総合的に分析し、マイクロ孔やメソ孔、その他の物性値が高压ガス吸着能力に対して相関を有しているのかを検討した。これらの研究から、マイクロ孔領域内のウルトラマイクロ孔と吸着能力の間に有意な相関が得られ、このことからマイクロ孔が高压ガス吸着能力に大きな影響を与えていることが示された(図3)。一方、TOCと吸着能力の間では相関を見出すことができなかった(図4)。以上のことから、珪質頁岩のガス貯留層においては低压窒素吸着法を用いた微細孔隙の解析が有効であることが示唆された。

表1 採取試料の物性値

採取場所と物性値						
試料名	採取場所	孔隙率 (%)	密度 (g/cc)	中央孔隙半径 (nm)	比表面積 (mm ² /g)	TOC (%)
H	山本郡八峰町花輪	17.3	2.1	13.0	20.9	1.4
K	由利本荘市君ヶ野	24.0	1.6	5.4	59.9	1.5
F	由利本荘市不動の滝西方	9.9	2.2	20.2	12.6	2.5
O	由利本荘市折渡駅付近	11.0	2.2	4.8	22.4	2.0
Y	由利本荘市矢島北郡柴倉山	22.4	1.9	26.5	18.1	2.1

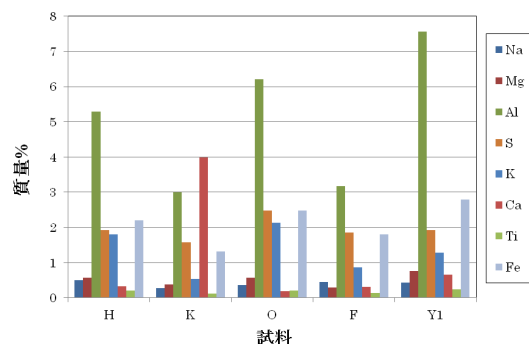


図1 採取試料の化学組成

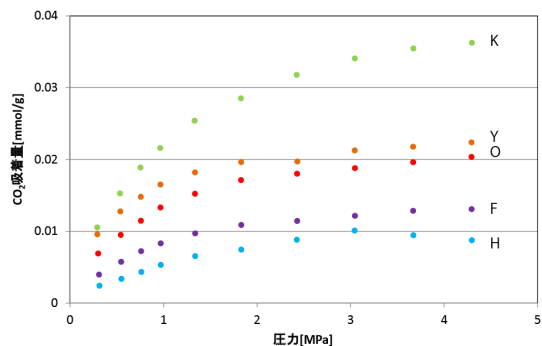


図2 圧力とCO₂吸着量の関係(25)

(6) ガス吸着量の測定は、シェールガスの中長期生産計画に多大な影響を与え重要である。しかし、開発初期段階ではガス吸着量の重要性は低く、かつ測定には時間と費用を要するため、分析記録が十分に取得されない点が、資源の有効活用の観点からの課題となっている。吸着可能量の情報を基にした増産計画の策定または不確定性の減少による開発リスクの低下などの長期的な商業的利点が現時点では限定的であるため、吸着量測定専用の岩石コア試料を確保することが経済的に困難な状況である。吸着可能量の分析記録が長期生産計画の最適化へ有効であることを明らかにするためには、豊富な記録を収集することが有効である。

(7) そこで、掘削カッティングス等の不定形試料からでも簡易的に吸着可能量を推定可能とする分析手法の開発が有効となる。本研究では、基礎試験として整形岩石試料を用いたが、掘削現場でも使用可能な、部品点数の少ない圧力容器で構成される測定装置による岩石試料のガス吸着に関する諸物性の測定を試みた。手法の特徴は、現場での測定記録を補完するために、流体流動数値計算を併用し、ガス生産推移による圧力と流量が合う条件を観測物性値とする推定手法である。提案手法で重要となるのは、圧力容器を用いた試験条件に対する数値計算で推定可能な感度範囲であり、各種条件で感度分析を行った。その結果、泥岩の吸着量は比較的高い感度を有し、推定可能性を有することが示された(図5)。しかし、浸透率の感度は不十分であり、測定条件を改良しなければ推定することは困難であることが示された(図6)。

(8) 増進回収法として、ナノ粒子を用いた研究が活発化されていることから、ナノ粒子による増進回収効果の評価実験を行った。この結果、ナノ粒子の分散にはゼータ電位の制御が重要で、分散剤を用いなくても地層中で安定分散させる方法が存在することがわかった。また、ナノ粒子を岩石の孔隙中に透過させるには、溶液中でナノ粒子同士の凝集を防ぎ、粒径の増加を抑えることが重要であり、岩石内の孔隙表面電荷と同極性の粒子表面の選択が重要であることがわかった。また、油分を水により掃攻置換する流動実験を行

ったところ、油分の増進回収効果を確認できる結果が得られた(図7)。しかし、ナノ粒子と純水では岩石表面への接触角にほとんど違いは見られなかった。従って、無機能性のナノ粒子は岩石の濡れ性に直接影響を及ぼさず、掃攻効果はナノ粒子の移流による物理的作用が要因となっていると考えられる。

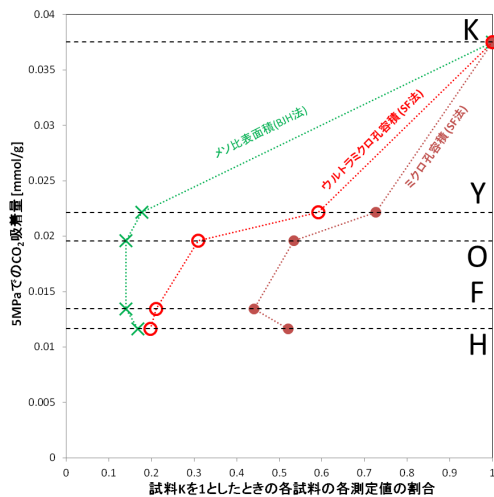


図3 CO2 吸着量と各測定値との関係

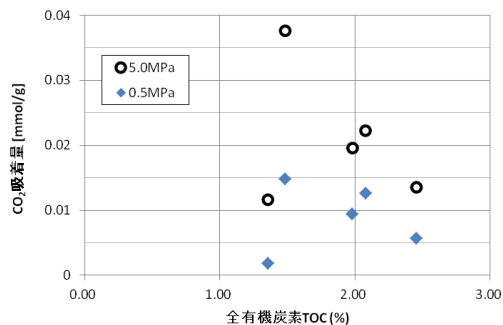


図4 CO2 吸着可能量と全有機炭素の関係

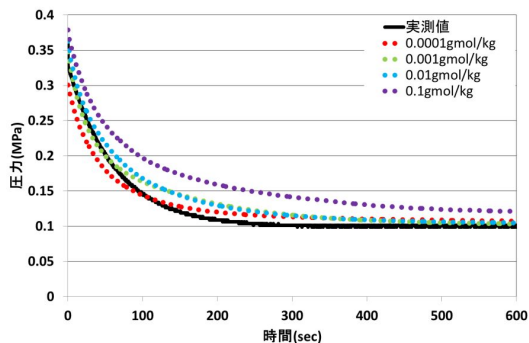


図5 圧力変化

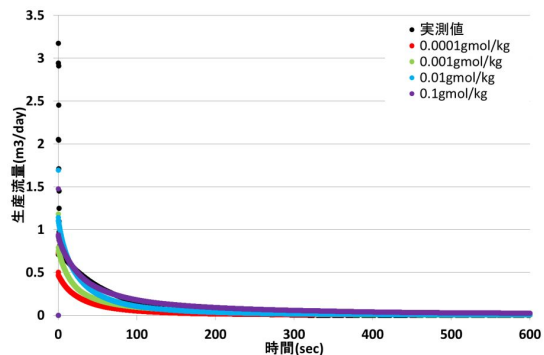


図6 生産流量の推移

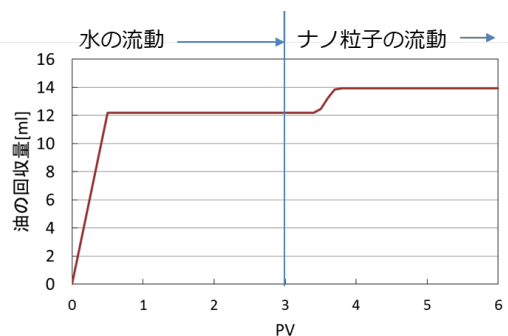


図7 油の回収量の推移

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計0件)

〔学会発表〕(計1件)

広瀬暉二, 尾西恭亮, 阿部一徳, 小助川洋幸, 藤井光, 珪質頁岩の微細孔隙が高压ガス吸着能力に与える影響, 平成28年度石油技術協会春季講演会講演論文集, 2016, p. 144.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕
出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

尾西 恭亮 (ONISHI, Kyosuke)
国立研究開発法人土木研究所・主任研究員
研究者番号: 20402969

(2) 研究分担者

なし

(3)連携研究者
なし

(4)研究協力者
なし