

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月 3日現在

機関番号：11201
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23760437
 研究課題名（和文）粒子分散系複合材料と仮定した場合の凍結過程における岩石-間隙水系の熱伝導率推定式
 研究課題名（英文）SIMULATION OF THERMAL CONDUCTIVITY OF ROCK-WATER SYSTEM UNDER FREEZING PROCESS BY ASSUMING PARTICULATE COMPOSITE
 研究代表者
 鴨志田 直人（KAMOSHIDA NAOTO）
 岩手大学・工学部・助教
 研究者番号：00400177

研究成果の概要（和文）：本研究では、始めに、凍結岩石の熱拡散率は任意加熱法を用いることで測定できることを明らかにした。次に、この測定法を用いて、間隙水の凍結と岩石（砂岩、凝灰岩）の熱拡散率との関係を測定した。最後に、凍結過程における砂岩の熱拡散率変化挙動は、岩石を粒子分散系複合材料と仮定することでシミュレーションできることを示唆した。一方で、凝灰岩は分散系と仮定しても推定不可能なことも明らかにした。

研究成果の概要（英文）：In this study, it was shown that the thermal diffusivity of frozen-state wet rock (water-saturated rock) using an optional heating method. Then, using the method, relationships between freezing of pore water and the thermal diffusivity of sandstone and tuff were obtained. Finally, it was suggested that the behavior of thermal diffusivity of the sandstone in freezing process was able to estimate by assuming a particulate composite. On the other hand, it was found the tuff that cannot be simulated the thermal diffusivity by assuming the particulate composite.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・地盤工学

キーワード：岩石-間隙水系，熱拡散率，任意加熱法，粒子分散系複合材料

1. 研究開始当初の背景

(1) 低温液化燃料の岩盤内貯蔵方式

石油の代替エネルギーとして需要増大が期待される天然ガス（ -160°C ）や液化水素（ -252°C ）、ジメチルエーテル（ -25°C ）など、低温液化燃料の安定供給実現には貯蔵施設の確保が課題となる。国土の狭い我が国では、液化燃料を常圧低温下で貯蔵する岩盤内貯蔵施設の重要性が認識されている。岩盤貯蔵貯蔵槽の設計（安定計算）では、プレクーリング時（燃料搬入時）と貯蔵運転時における空洞周辺岩盤の熱応力解析を行う。この熱応力解析には、空洞周辺岩盤の温度分布（熱伝導解析）が重要であり、基本的物性である岩

盤の熱物性値を知る必要がある。

(2) メタンハイドレートの開発

メタンハイドレート（MH）は、日本周辺海域を始め世界的に分布しており、新たな天然ガス資源として期待されている。MHを生産（MHのガス化）すると、MH層は土粒子骨格のみとなるため、生産後のMH層は地盤沈下や海底液化の危険性を有することとなる。したがって、低温高压下でのみ存在するMHの開発では、MH層内のメタンガス化範囲を把握することが重要であり、その解析（熱伝導解析）には、MH層（砂質堆積物）の熱物性値を知る必要がある。

(3) 熱伝導解析の問題点

熱伝導解析では、材料の基本物性である熱物性値（熱伝導率、熱拡散率、定圧比熱）が必要となる。低温液化燃料の岩盤内貯蔵では間隙水が凍結するため、岩盤の熱物性値は、間隙水が不凍水のままの湿潤岩石と間隙水が凍結した凍結岩石の両者を測定する必要がある。しかし、湿潤岩石の冷却過程では、間隙径の大きいものより順に凍結することが知られており（鴨志田ら、Journal of MMIJ, 2011）、冷却過程における岩石の熱物性値の測定は難しい。メタンハイドレート生産では、減圧によりメタンハイドレートがガス化するため、砂質堆積物の熱物性値は、ハイドレート内在の砂質堆積物と、メタンガス内在の砂質堆積物の両者を測定する必要がある。

2. 研究の目的

従来の研究で用いられてきた材料の熱物性値測定手法は、試験片の形状、加熱条件、断熱条件などの制約条件が多く、岩石の測定技術として用いるのは難しい。これまで、研究代表者らは、加熱条件と境界条件に制約のない任意加熱法による熱拡散率の測定法を常温の岩石に適用させ、その有用性を実証してきた（今井ら、応用地質、2004）。そこで、本研究では、この任意加熱法を用いて低温下における岩石の熱拡散率を測定する。

具体的には、研究期間内には以下のことを明らかにする。

(1) 任意加熱法による熱拡散率の測定原理を岩石試験片に適用し、 $0^{\circ}\text{C}\sim-100^{\circ}\text{C}$ の温度範囲における本測定法の有用性を実証する。任意加熱法による 0°C 以下での岩石の熱拡散率を測定した報告例はない。本研究において 0°C 以下での任意加熱法の有用性を実証する必要がある。得られた熱拡散率より、岩石の熱伝導率を求める。

(2) $0^{\circ}\text{C}\sim-100^{\circ}\text{C}$ の温度範囲において岩石の熱拡散率を測定し、湿潤岩石から凍結岩石までの熱伝導率の変化挙動を明らかにする。間隙水は、温度の低下とともに間隙径の大きい順番に凍結する（鴨志田ら、MMIJ, 2011）。熱伝導率は、水（ 0.56W/mK ）と氷（ 2.2W/mK ）とで異なり、温度の低下とともに岩石の熱伝導率が徐々に増加すると考えられる。

(3) 造岩鉱物-間隙空気-複合体である「乾燥岩石」、造岩鉱物-間隙水の複合体である「湿潤岩石」、および、造岩鉱物-間隙氷の複合体である「凍結岩石」の熱拡散率推定を試みる。本研究では、湿潤岩石および凍結岩石を粒子分散型複合材料と仮定し、上記(2)の結果をもとに熱拡散率のシミュレーションを行う。

3. 研究の方法

(1) 測定原理

任意加熱法による円柱供試体の熱拡散率

の測定原理について説明する（飯田ら、日本機械学会論文集B編、1982）。ここで、熱流 q は無限円柱体の側面から中心に向かってのみ伝導するものとする。また、 r は試料の中心を原点とする半径方向の座標、 t は加熱経過時間とし、試料の中心から距離 r だけ離れた点における時刻 t の試料温度分布を $T(r,t)$ とする。いま、試料の初期温度分布 $T(r,0)$ は一樣とし、温度差 $\theta(r,t)$ を式①で定義する。

$$q(r,t) = T(r,t) - T(r,0) \quad \dots ①$$

この温度差 $\theta(r,t)$ を用いて熱伝導方程式を円柱座標系に書き直すと式②となる。

$$\frac{\partial q(r,t)}{\partial t} = a \left[\frac{\partial^2 q(r,t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial q(r,t)}{\partial r} \right] \quad \dots ②$$

ここで、 a は熱拡散率である。式②をラプラス変換し、 $\theta(r,t)=0$ を代入して常微分方程式に直すと式③となる。

$$\frac{d^2 \bar{q}}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\bar{q}}{dr} - \frac{s}{a} \bar{q} = 0 \quad \dots ③$$

ここで、 s はラプラス変換の変換子であり、本研究での s は実数とする。また、 \bar{q} は式④で定義される $\{\theta(r,t)\}_{t=0}^{\infty}$ のラプラス積分の解である。

$$\bar{q} = \int_0^{\infty} e^{-st} q(t) dt \quad \dots ④$$

さらに、式③の一般解は式⑤で与えられる。

$$\bar{q} = C I_0(\sqrt{s/a} \cdot r) - D K_0(\sqrt{s/a} \cdot r) \quad \dots ⑤$$

ただし、 C 、 D は積分定数であり、 I_0 、 K_0 はそれぞれ第一種、第二種の零次変形ベッセル関数である。

一方、熱流束 $q(r,t)$ はフーリエの式で与えられる。

$$q(r,t) = -\lambda \frac{\partial T(r,t)}{\partial r} = -\lambda \frac{\partial q(r,t)}{\partial r} \quad \dots ⑥$$

ここで、 λ は熱伝導率である。式⑥をラプラス変換し、式⑤を代入すると式⑦となる。

$$\bar{q} = -\lambda \sqrt{\frac{s}{a}} \left\{ C I_1(\sqrt{s/a} \cdot r) - D K_1(\sqrt{s/a} \cdot r) \right\} \quad \dots ⑦$$

次に、任意点 $r=r_i$ および中心点 $r=0$ を温度測定点とし、これらの点における温度差関数をそれぞれ $\theta_i(t)$ 、 $\theta_0(t)$ と定義する。さらに、それぞれのラプラス積分の解を $\bar{q}_i(t)$ 、 $\bar{q}_0(t)$ とする。ここで、 $r=0$ のとき、式(7)より $(\bar{q})_{r=0}=0$ であるから $D=0$ となる。また、式⑤より $I_0(0)=1$ であるから $C=\bar{q}_0$ となる。よって、式⑤は式⑧となる。

$$\frac{\bar{q}_i}{\bar{q}_0} = I_0(\sqrt{s/a} \cdot r_i) \quad \dots ⑧$$

以上のことから、円柱内の任意点および中心

点における温度変化を測定し、 \bar{q}_i/\bar{q}_0 を求めることで、 I_0 関数より熱拡散率 a を求めることができる。

また、式④のラプラス積分は無限大の時間まで行うように定義されているが、実際上はその必要はない。一般に t の増加と共に $e^{(-st)}\theta(t)$ は零に収束する関数であるため、近似的に式⑨が成立するような測定時間 t_{\max} が存在する。

$$\int_0^{\infty} e^{-st} q(t) dt = \int_0^{t_{\max}} e^{-st} q(t) dt \quad \dots \textcircled{9}$$

なお、 s は $8 \leq st_{\max} \leq 12$ を満たす必要がある。

さらに、式⑧を以下に述べる方法で近似することで簡便に熱拡散率 a を求める(今井ら, 応用地質, 2004)。

式⑧を I_0 の逆関数 I_0^{-1} に変換すると式⑩となる。

$$\sqrt{s/a} \times r_i = I_0^{-1} \left(\frac{\bar{q}_i/\bar{q}_0}{e^{-st}} \right) \quad \dots \textcircled{10}$$

次に、式⑩を式⑪で近似し、熱拡散率 a について解くと式⑫となる。

$$I_0^{-1}(x) \approx A(x-1)^B \quad \dots \textcircled{11}$$

$$a = \frac{\hat{e}}{\hat{e}} \frac{r_i^2}{A(\bar{q}_i/\bar{q}_0 - 1)^B} \frac{\hat{u}}{\hat{u}} s \quad \dots \textcircled{12}$$

ただし、定数 A , B は、次の区間に分けて設定する。なお、近似式(11)の精度は誤差 0.2% 以下の範囲にある。

$$(a): \quad 1 < \frac{\bar{q}_i}{\bar{q}_0} < 1.33 \rightarrow A=1.927, B=0.4911$$

$$(b): \quad 1.33 \leq \frac{\bar{q}_i}{\bar{q}_0} < 2.13 \rightarrow A=1.812, B=0.4401$$

$$(c): \quad 2.13 \leq \frac{\bar{q}_i}{\bar{q}_0} < 3.35 \rightarrow A=1.819, B=0.3872$$

(2) 測定試料

供試岩石は、荻野凝灰岩(福島県喜多方市高郷町産)と来待砂岩(島根県松江市宍道町産)の2岩種である。表1に供試岩石の基礎物性値を示す。

岩石供試体は、直径 35mm、長さ 70mm の円柱形とした。供試体には、温度測定孔として直径 3mm、深さ 35mm (供試体長さの半分) の孔を、端面の中心および中心から約 $r=10\text{mm}$ の位置の2カ所にあけた。なお、測定原理上、供試体は無限の長さの円柱を仮定しているが、熱拡散率が岩石程度であるならば、円柱の長さを直径以上にすれば上下端面からの放射熱の影響を無視することができる。

整形した供試体は、85°Cの乾燥炉内で 48

時間以上乾燥させた後、室温まで冷ましたものを本研究における乾燥状態とし、この乾燥状態にある供試体を真空容器中で 48 時間以上水中脱気養生したものを湿潤状態として実験に供した。

表 1 供試岩石の基礎物性値

		Ogino tuff	Kimachi sandstone
Dry density	(g/cm ³)	1.57	2.03
Effective porosity	(%)	28.7	20.2
Uniaxial compressive strength	(MPa)	49.9	40.6
Young's modulus	(GPa)	7.25	9.13
Poisson rate	(-)	0.114	0.177
Velocity of P-wave	(km/s)	2.59	2.63
Velocity of S-wave	(km/s)	1.72	1.67

(3) 測定装置

本測定では、温度測定にシース型熱電対 ($\phi 1.0\text{mm}$) を用い、測定温度は、データロガーに記録した。

恒温槽として断熱材で覆った真空断熱式デュワー瓶を用い、熱源(冷媒)にはエタノールを用いた。無水のエタノールを用いた理由として、融点が-130°Cであり-100°Cまで十分に冷媒として利用できること、沸点が78.5°Cであり氷点以下では気化しないこと、さらに入手が容易かつ安価なことが挙げられる。

(4) 測定手順

供試体は、予め冷凍したものを試験に供した。供試体は、2つの測定孔に熱電対をそれぞれ挿入し、さらに断熱材で供試体の上下端面を覆った後、エタノールの浸透を防ぐためラップフィルムで全体を被覆した。

熱拡散率の計測は、供試体温度-10°C、冷媒温度-40°Cの降温過程を2回、供試体温度-40°C、冷媒温度-10°Cの昇温過程を1回の計3回行った。具体的には、供試体準備後、供試体内部の2カ所の測定孔の温度が一致していることを確認し、供試体を-40°Cの冷媒で満たされた恒温容器内に素早く入れ、計測を開始した。測定は、供試体測定孔の各温度がほぼ一定となったところで終了した。次に、供試体を-10°Cの冷媒に入れて、再度計測した。さらに、2回目の計測を終えた後、供試体を-40°Cの冷媒に入れて、3回目の計測を行った。

測定した温度データは、パーソナルコンピュータで解析し、供試体の熱拡散率 a を算出した。

4. 研究成果

(1) 任意加熱法を用いた岩石の熱拡散率の測定

図1に岩石の熱拡散率測定結果を示す。1

供試体につき3回計測を行った。本試験結果より、任意加熱法を用いた本測定方法では、岩種、含水状態に関係なく、概ね平均値±5%の不確かさ（平均供試体内部温度-20℃の場合）で熱拡散率を求めることが可能であると考えられる。なお、本測定におけるこの不確かさは、本測定回数が3回と少ないにも関わらず、今井らと同程度の測定精度となった。

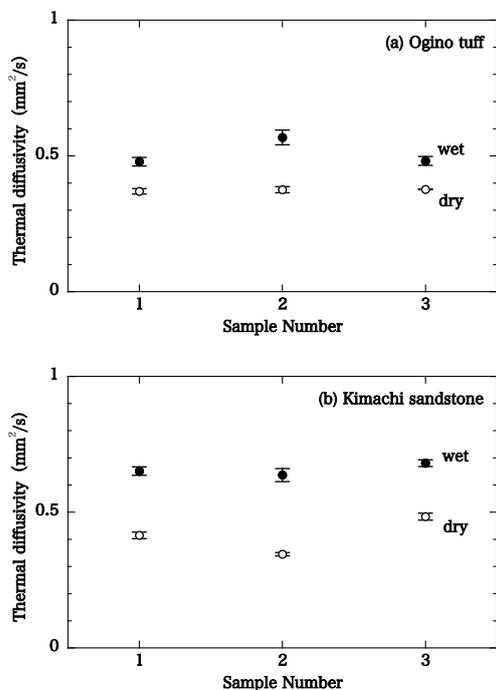


図1 岩石の熱拡散率測定結果（試験片-20℃）

(2) 凍結した湿潤岩石の熱拡散率温度依存性

間隙水の凍結過程が湿潤岩石の熱拡散率に及ぼす影響を調べるため、間隙率の大きい来待砂岩、荻野凝灰岩について、供試体温度-100℃から-10℃の範囲で熱拡散率の測定を行った。

図2に岩石の供試体温度と熱拡散率の関係を示す。同図には、常温下（25℃）で計測した供試体の熱拡散率も合わせて示した。湿潤砂岩の熱拡散率は、室温から-20℃に冷却すると増加し、その後-50℃にかけて急増し、さらに-50～-90℃にかけてほぼ一定となる挙動を示し、温度依存性がみられた。一方、乾燥砂岩では試験片温度の低下による熱拡散率の変化はみられなかった。

湿潤砂岩において、0～-50℃にかけて熱拡散率が急増する挙動は、融点（0℃）で砂岩中の全間隙水が一度に凍結するのではなく、孔径の大きい間隙の間隙水から順に凍結する過程に対応していると考えられる。

湿潤凝灰岩は、常温（25℃）、-20～-90℃と試験片温度を低下させても熱拡散率はほぼ一定の値を示し、温度依存性はみられなかつた。

また、乾燥凝灰岩においても、湿潤凝灰岩と同様に、試験片温度の低下による熱拡散率の変化はみられなかった。

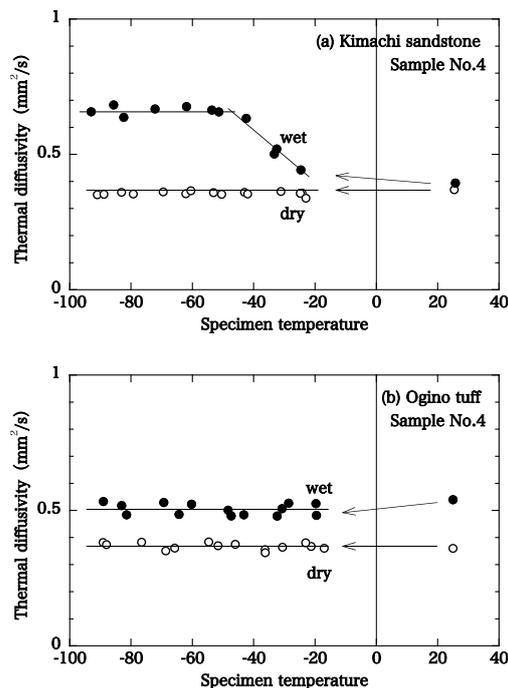


図2 岩石の供試体温度と熱拡散率の関係

(3) 岩石を粒子分散系複合材料と仮定した場合の熱拡散率の推定

間隙水の凍結が湿潤岩石の熱拡散率に及ぼす影響を検討するため、本研究では岩石を粒子分散系複合材料（母材：造岩鉱物、粒子；間隙）と仮定し、粒子材料の違い（空気、水、氷）で岩石の含水状態・凍結状態を区別する手法で、模擬岩石の熱拡散率と温度との関係について推定を試みた。

一般に粒子分散系複合材料の熱拡散率を母材と粒子の熱拡散率から推定する式は定まっていない。そこで、本研究では、直接分散系の熱拡散率を計算するのではなく、始めに母材と粒子の熱物性値から分散系の熱伝導率、定圧比熱、密度を算出し、その後、次式を用いて分散系の熱拡散率を算出する手法をとった。

図3(a)に入力に用いた母材（熔融石英）と粒子（空気、水、氷）の熱拡散率と温度の関係を、図3(b)に分散系模擬岩石の温度と熱拡散率の関係を示す。同図(a)より、熔融石英の熱拡散率は、温度の低下にしたがい微増する。間隙空気の熱拡散率は、熔融石英と比べて10倍程度大きく、また、熔融石英と異なり温度の低下にしたがい減少する。間隙水の熱拡散率は、熔融石英と比べ1/10程度小さく、温度の低下にしたがい微減する。融点（0℃）を下回ると間隙水は凍結することで、熱拡散率は水から氷へと10倍程度急増する。

間隙氷の熱拡散率は、熔融石英と比べて 1.3 倍程度大きく、また、熔融石英と同様に温度の低下にしたがい増加するが、その増加の割合は熔融石英よりも大きい。以上をまとめると、シミュレーションに用いた母材と粒子の熱拡散率は、気体（間隙空気）≫固体（間隙氷>熔融石英）≫液体（間隙水）の順に大きく、温度の低下とともに熱拡散率が減少する気体、液体と、増加する固体とに分けることができる。

同図 (b) より、乾燥状態の模擬岩石では、温度が低下するにしたがい熱拡散率はわずかに増加する。間隙率の違いによる熱拡散率の変化に目を向けると、間隙率が大きくなるほど熱拡散率は小さくなり、温度の低下ともなう熱拡散率の減少傾向も小さくなる傾向を示す。一方、湿潤状態の模擬岩石では、熱拡散率は、室温から融点 (0°C) にかけてほぼ一定の値を示し、間隙水が間隙氷に変わる融点において急増し、その後 0°C から -90°C において増加する傾向を示す。また、間隙率の違いによる熱拡散率の変化に目を向けると、間隙率が大きくなるほど、常温下では熱拡散率が小さくなるが、間隙水が凍結する 0°C 付近では熱拡散率に間隙率の大小による大きな違いはみられず、0°C から -90°C においては、間隙率が大きくなるほど熱拡散率が大きくなる傾向を示す。

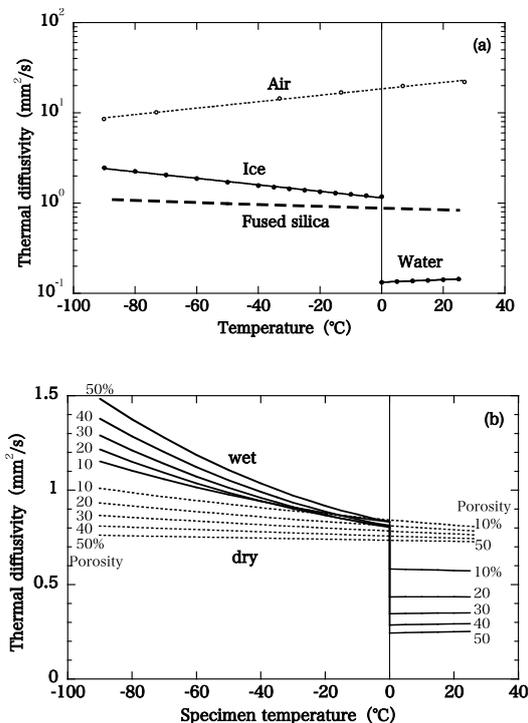


図 3 分散系模擬岩石の熱拡散率の推定結果

以上の結果より、来待砂岩の熱拡散率に及ぼす含水状態、供試体温度の影響については、粒子分散系複合材料と仮定することで熱拡

散率を推定することが可能であることが示された。一方、荻野凝灰岩の熱拡散率については、シミュレーション結果とは異なる挙動を示したことから、粒子分散系複合材料と仮定することができないことを意味する。よって、凝灰岩の熱拡散率の挙動は、粘土鉱物の有無に支配される可能性が考えられる。そのため、凝灰岩の熱拡散率温度依存性については、今後、測定事例を増やし、さらに検討を行う必要があると考える。

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 2 件)

- ① 鴨志田直人, 大河原正文, 吉田恭平, 阿部正良, 凍結状態にある岩石の任意加熱法を用いた熱拡散率の測定, Journal of MMIJ, 査読有, Vol. 129, 2013, 掲載決定
- ② 鴨志田直人, 大河原正文, 阿部正良, 凍結過程における凝灰岩の任意加熱法を用いた熱拡散率の測定, 第 13 回岩の力学国内シンポジウム講演論文集, 査読有, 2013, 533-538

[学会発表] (計 3 件)

- ① 鴨志田直人, 大河原正文, 阿部正良, 凍結過程における凝灰岩の任意加熱法を用いた熱拡散率の測定, 岩の力学連合会, 2013. 1. 10, 沖縄コンベンションセンター (沖縄県)
- ② 鴨志田直人, 大河原正文, 阿部正良, 任意加熱法による氷結岩石の熱拡散率測定, 資源・素材学会, 2012. 9. 13, 秋田大学手形キャンパス (秋田県)
- ③ 鴨志田直人, 液化天然ガスの岩盤内貯蔵を目指して, 砕石研究会 (招待講演), 2012. 6. 29, ホテル・ルイズ (岩手県)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鴨志田 直人 (KAMOSHIDA NAOTO)

岩手大学・工学部・助教

研究者番号: 00400177