

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 27 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009～2012

課題番号：21360446

研究課題名（和）超臨界二酸化炭素の岩盤内圧入効率の改善と安全性確保に関する研究

研究課題名（英文）Investigation on efficiency and security improvement on injection of supercritical carbon dioxide into rock.

研究代表者：石田 毅（ISHIDA TSUYOSHI）

京都大学・工学系研・教授

研究者番号：10232307

研究成果の概要（和文）：

火力発電所などから排出される CO<sub>2</sub>（二酸化炭素）を分離回収し地中に貯留すれば、有効な地球温暖化対策となるが、そのためには、地中に圧入された CO<sub>2</sub> の挙動を調べておく必要がある。本研究では CO<sub>2</sub> を花崗岩に圧入して破碎する実験を行った。その結果、CO<sub>2</sub> は粘度が小さいため、水に比べて分岐の多い 3 次元的亀裂が広い範囲に造成される傾向が見られた。このことは、シェールガスや高温岩体地熱開発などの亀裂造成に CO<sub>2</sub> を有効に利用しつつ地中貯留を実現できる可能性を示している。

研究成果の概要（英文）：

The underground sequestration of Carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) seems to the most prospective and realistic method of reduce the greenhouse gas effect on the earth. To realize the project, it is necessary to understand behavior of injected CO<sub>2</sub> in rock. In this research, we made hydraulic fracturing experiments in granite specimens using CO<sub>2</sub> as fracturing fluid. The results indicate the tendency that CO<sub>2</sub> induces more three dimensionally and widely spreading cracks than water due to its low viscosity. The results suggest that hydraulic fracturing using CO<sub>2</sub> can generate efficient cracks for shale gas production and hot dry rock geothermal extraction, with realizing the underground sequestration of CO<sub>2</sub> at the same time.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	8,200	2,460	10,660
2010 年度	4,300	1,290	5,590
2011 年度	1,300	390	1,690
2012 年度	1,000	300	1,300
年度			
総計	14,800	4,440	19,240

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・地球・資源システム工学

キーワード：二酸化炭素地中貯留, 岩盤力学, Acoustic Emission, 微小破壊

## 1. 研究開始当初の背景

わが国のCO<sub>2</sub>の30%は火力発電所から発生しており、火力発電所などの大量発生源でCO<sub>2</sub>を回収して地中に貯留し大気中への放出を防止できれば、京都議定書で国際的に約束した温室効果ガス排出6%減を実現できるとともに、地球温暖化の速効的かつ緊急避難的な対策となり得る。

現在検討されている最も有力なCO<sub>2</sub>の地中貯留は、陸域や海域の帯水層に貯留する方法である。わが国では新潟県の岩野原において、年間1万トンの規模で実験が行われたが、諸外国では次の3地点で、年100万トンを超える実用的規模での地中貯留がすでに実施されている。

(1) Sleipner (Norway, 1996～, 年100万トン)

(2) Weyburn (Canada, 2000～, 年180万トン)

(3) In-Salah (Algeria, 2006～, 年115万トン)

このような大量のCO<sub>2</sub>を貯留層中に圧入するためには、岩盤の安定性を損なうことなく流体を効率よく岩盤内に圧入する必要があるが、カナダのWeyburnではCO<sub>2</sub>圧入によって微小地震が発生することが確認されている。Weyburnは亀裂を多く含む石灰岩の油田であり、CO<sub>2</sub>圧入に伴う間隙水圧の増加による局所的な岩盤の破壊が生じていることが考えられる。またIn-Salahでは衛星データの解析で地表の隆起が観測されている。In-Salahでは貯留層の浸透性が低く複数の圧入井からCO<sub>2</sub>を圧入しているため、岩盤の亀裂を押し広げて地盤の隆起を引き起こしている可能性がある。WeyburnやIn-Salahでの観測結果は、CO<sub>2</sub>圧入による岩盤の破壊メカニズムの解明や遮蔽性を期待している貯留層上部のキャップロックの安定性評価が必要であることを示している。

## 2. 研究の目的

CO<sub>2</sub>は、圧力7.39MP以上、温度31.2℃以上で超臨界状態となるが、地中貯留で想定されている地下1000mを越える地下深部に圧入すれば、多くの場合この温度・圧力条件を満たし、超臨界状態となる。超臨界状態は気体と液体の中間的な状態であり、CO<sub>2</sub>の場合、水に対する比重は0.5、粘度は水の1/100～1/10という、軽いさらさらとした状態である。

研究代表者は、1辺19cmの立方体の花崗岩供試体に地圧状態を模擬した6MPaと3MPaの拘束圧を載荷し、これらの載荷方向と直交する方向にボーリング孔を掘削し、粘度80cPの自動車用トランスミッション・オイルと粘度1cPの水を用いて水圧で花崗岩を破碎する実験を行った経験がある。この実験では、

粘度の大きな油の場合には引張破壊が卓越し幅の大きな平面的な亀裂が生じるのに対し、油に比べ粘度が1/80の水による破碎ではせん断破壊が卓越し幅の小さい亀裂が数多く分岐する傾向が顕著であった。このように、破碎流体の粘度が低下すると、岩盤の破壊メカニズムが引張破壊からせん断破壊に変化し、岩石中に分岐の多い微細なクラックが多数発生するため、水に比べて粘度が1/100～1/10と小さい超臨界CO<sub>2</sub>を圧入すれば、水の場合よりも微細なクラックが発生する可能性が大きい。そこで本研究では、1辺17cmの立方体岩石供試体を用い、超臨界状態のCO<sub>2</sub>を用いて高圧圧入実験を行い、AEの測定によって破壊メカニズムと発生する亀裂の特徴を明らかにすることを目的とした。

## 3. 研究の方法

実験は次の方法で行った。

### (1) 供試体

供試体には一辺170mm角の立方体の山口県黒髪島産花崗岩を使用し、図1に示すように、中央に直径20mmの円孔を穿孔した。AEを測定するため供試体側面には16個の圧電素子(共振周波数300kHz)を貼り付けた。供試体を載荷板で覆い、載荷時に圧電素子に圧力がかからないようにした。また、円孔の中央部には、60mmの加圧区間の上下端にOリングをはめ込んだパッカーを設置し、圧入流体の温度を計測するためにパッカー上部に熱電対を取り付けた。

### (2) 流体圧入方法

CO<sub>2</sub>は圧力7.38MPa、温度31.0℃以上で超臨界状態となるため、超臨界状態で供試体を破碎するためには、この圧力温度条件を満たす必要がある。そこでこの実験のために、図2に示すようなCO<sub>2</sub>の圧入システムを構築した。まず、ポンベからシリンジポンプのシリンダ内にできるだけ多くのCO<sub>2</sub>を充填するために、冷却装置を用いてCO<sub>2</sub>を液体状態で導いた。そしてシリンジポンプで流量を制御し供試体の円孔中央部に設置したパッカーへと吐出した。このとき液体状態のCO<sub>2</sub>を超臨界状態にするために、ヒーターで加熱した。孔内への注入圧はプレッシャーゲージを用いて測定した。岩石が破碎し、流体圧が低下すると直ちに注入を停止した。また、液体CO<sub>2</sub>、水及び油を用いた場合については、これらの流体をシリンジポンプ内に満たし、流量を制御して実験を行った。このとき、実験は室温で行い、ヒーターによる流体の加熱は行っていない。なお、超臨界CO<sub>2</sub>、液体CO<sub>2</sub>の実験は流量30cc/min.で、水と油の実験では10cc/min.で行った。

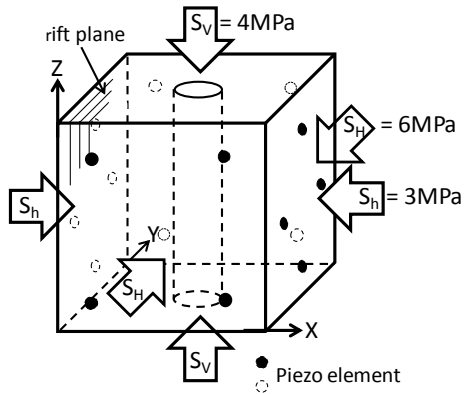


図1 供試体への载荷条件と圧電素子の位置

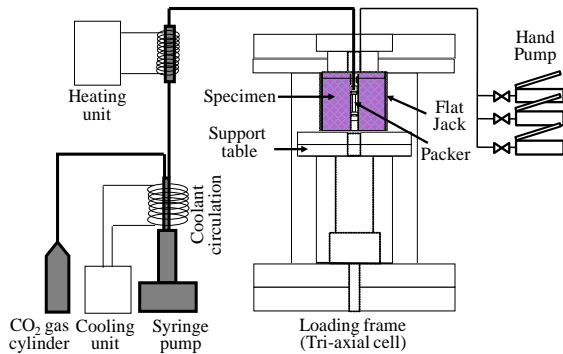


図2 実験装置の概要

### (3) 载荷方法

供試体には、フラットジャッキを用いて三方向から独立な圧力を载荷した。各方向の圧力は、油圧式ハンドポンプで $S_v=3\text{MPa}$ 、 $S_h=6\text{MPa}$ 、 $S_h=4\text{MPa}$ を载荷した。各方向の载荷圧は設定した値まで増加させた後にバルブを閉め、実験開始から終了まで一定に保った。载荷圧は注入圧と同じくプレッシャーゲージを用いて測定した。なお、超臨界CO2を用いる場合には温度を $31.0^\circ\text{C}$ 以上に保つために三軸セル内に $45^\circ\text{C}$ 程度の温水を循環させた。

### (4) AE測定

圧電素子で受振された信号は、プリアンプで36dB(約64倍)増幅され、シグナルコンディショナへ導かれる。シグナルコンディショナには、信号増幅のためのメインアンプ、ノイズ除去のためのバンドパスフィルタ、受振する信号の振幅の閾値を設定できるディスクミネータが内蔵されている。今回は、メインアンプの増幅を24~36dBに設定した。また、バンドパスフィルタにより、周波数が80kHzから500kHzの範囲の信号を収録することとした。閾値は0.3Vに設定した。受振された信号の振幅がディスクミネータで設定した閾値を越えた時にシグナルコンディショナからTTL信号が出力され、それがトリガーとな

ってAE波形がデジタイザに収録される。サンプリングタイムは0.1msとし供試体に貼り付けた16個の圧電素子のうちどれか一つで信号が受振されれば波形が収録されるように設定している。また、シグナルコンディショナから出力されたTTL信号はカウンタボードで計数することにより、チャンネル毎に1秒間のAE発生数を記録した。

### 4. 研究成果

図3に超臨界CO2で供試体を破碎したときの流体の圧力、3方向の拘束圧、パッカー上部の温度、全チャンネルの平均AE発生数の経時変化のグラフを示す。試験開始305秒後に流体圧が最大値をとり、その後圧力は低下した。流体圧の最大値は11.53MPaであり、これを破碎圧とした。また、破碎時の温度は $34.8^\circ\text{C}$ であり、このとき破碎は超臨界状態のCO2によって起きたことが分かる。また、破碎直後の急激な温度低下は、亀裂発生に伴うCO2の漏洩によりCO2が断熱膨張したためと思われる。図3には1秒あたりのAE発生数を示すが、破碎直後に大量にAEが発生し、以後数十秒間にわたって発生していることが分かる。

発生したAEから震源を求め、図4に震源分布のXY、YZ、ZX面への投影図と供試体表面で確認された亀裂を比較して示す。XZ面において $Y=0\text{mm}$ の面では亀裂は見られたが、 $Y=170\text{mm}$ の面においては亀裂は見られなかった。XY面に関しては図中の黒い線が $Z=170\text{mm}$ を、灰色の線が $Z=0\text{mm}$ の面の亀裂を示している。また震源も円孔を中心とするYZ面に沿って分布しており、おおむね亀裂と一致していることが分かる。

このような実験結果を超臨界CO2、液体CO2、水、粘度の大きい油で破碎した結果と比較して、次の成果が得られた。

(1) 破碎流体の粘度は超臨界CO2、液体CO2、水、油の順に1オーダーずつ大きくなるが、水压破碎試験の破碎圧力は粘度が小さいほど小さくなる傾向がみられ、超臨界CO2による破碎圧力は最も小さかった。

(2) 破碎時にAE(Acoustic Emission)を観測してその震源を決定し、AE震源の空間分布に対して近似平面を求めその平面からの震源の平均距離を求めるとともに、震源分布のフラクタル次元を求めた。その結果、油などの粘度の大きな流体の破碎では亀裂が平面的に分布するのに対し、超臨界CO2などの粘度の小さい流体の破碎では平面から逸脱して細かく分岐してより立体的に分布する傾向がみられた。

この研究成果の一部を2012年8月29日に米国の地球物理学会の学術雑誌 Geophysical Research Letters に発表したところ、英国の科学雑誌 New Scientist Magazine 社から

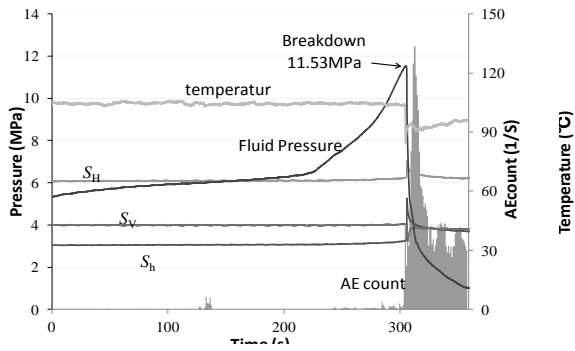


図3 超臨界CO<sub>2</sub>による破砕結果

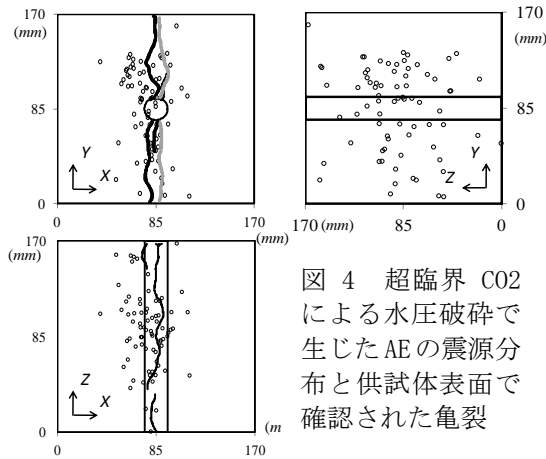


図4 超臨界CO<sub>2</sub>による水圧破砕で生じたAEの震源分布と供試体表面で確認された亀裂

問い合わせがあり、8月31日に同誌のWebサイト(※1)に紹介された。この記事では、研究代表者らの研究により、CO<sub>2</sub>による水圧破砕では分岐の多い3次元的な亀裂を広い範囲に造成されることが示されたと紹介し、シェール(頁岩)がCH<sub>4</sub>よりCO<sub>2</sub>に対してより強い親和性を有していることからCO<sub>2</sub>フラクチャリングに増進回収法として効果が期待でき、この破砕技術がシェールガス開発の新たな有力な技術となる可能性を指摘している。論文やこの記事を読んだカナダのコンサルタントからはCO<sub>2</sub>フラクチャリングのメカニズムを教えてくださいとの依頼があり、また南アフリカの技術者からは受託研究を石油会社に提案したいので共同研究者として参加してほしいとの要請があった。他にも中国、ヨーロッパなどからも問い合わせが相次いでいる。

さらに2013年3月には、米国のMIT Technology Review社の記者から同様の問い合わせがあり、3月22日付で同誌のWebサイト(※2)に紹介された。この紹介記事では、CO<sub>2</sub>による水圧破砕は砂漠のような水を確保しにくい乾燥地域のシェールガス開発に有用であると指摘している。また最近シェールガス開発の水圧破砕に使用されている水(スリック・ウォーター)に混ぜられた化学物質による環境汚染が危惧され反対運動が起き

ているが、CO<sub>2</sub>を用いた破砕であれば環境汚染の心配がなくその点でも有利であるとしている。

一方従来の地熱開発では、地下の高温高压状態で水に溶け込んだ鉱物成分が、地表に湧出すると低温低压状態となるため、地上付近の配管で析出して配管を閉塞させることが問題となっている。CO<sub>2</sub>は鉱物を溶解する能力がないのでこのような問題が生じない。本研究で明らかになったように細かく分岐した亀裂が広い範囲に広い範囲に造成されるのであれば、高温岩体地熱発電のための亀裂造成法としても有用と思われる。

このように本研究の成果は、当初の研究目的のCO<sub>2</sub>地中貯留の圧入効率の改善と安全性確保に関する研究成果に留まらず、シェールガス開発や高温岩体発電と組み合わせたCO<sub>2</sub>地中貯留技術の開発のきっかけを与えたといえる。今後は、当初の研究目的に対する研究開発をさらに進展させるとともに、石油天然ガス金属鉱物資源機構の協力を得て、シェールガス開発や高温岩体地熱開発など、我が国のエネルギー問題を解決するための技術開発を行っていきたく考えている。

※1) <http://www.newscientist.com/article/dn22232-fracking-could-be-combined-with-carbon-capture-plans.html>

※2) <http://www.technologyreview.com/news/512656/skipping-the-water-in-fracking/>

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

- ① Ishida, T., Aoyagi, K., Niwa, T., Chen, Y., Murata, S., Chen, Q. and Nakayama, Y.: Acoustic emission monitoring of hydraulic fracturing laboratory experiment with supercritical and liquid CO<sub>2</sub>, Geophysical Research Letters, Vol. 39, L16309, doi:10.1029/2012GL052788, 2012.

〔学会発表〕(計9件)

- ① 乾周平, 永谷侑也, 青柳和平, 石田毅, 奈良禎太, 陳友晴, 陳渠, 中山芳樹: 二酸化炭素, 水及び油による水圧破砕実験, 日本材料学会第62期学術講演会講演論文集, pp. 89-90, 2013年5月
- ② 永谷侑也・青柳和平・石田毅・奈良禎太・陳渠・中山芳樹: 超臨界及び液体二酸化炭素と水, 粘度の大きな油による水圧破砕実験, 第13回岩の力学国内シンポジウム講演論文集, pp. 419-424, 2013年1月
- ③ 永谷侑也・青柳和平・石田毅・奈良禎太・陳渠・中山芳樹: 超臨界及び液体二酸化炭素と水, 粘度の大きな油による水圧破砕

- 実験：資源・素材学会関西支部第9回（平成24年度）若手研究者・学生のための研究発表会発表要集，pp. 38-39，2012年11月
- ④ 永谷侑也・青柳和平・山川彩香・石田毅・奈良禎太・村田澄彦・陳渠・中山芳樹：超臨界二酸化炭素と水による水圧破碎実験，資源・素材学会秋大会講演集，pp. 169-172，2012年9月
- ⑤ Ishida, T., Niwa, T., Aoyagi, K., Yamakawa, A. Chen, Y., Fukahori, D., Murata, S., Chen, Q., and Nakayama, Y.: AE monitoring of hydraulic fracturing laboratory experiment in granite with supercritical and liquid state carbon dioxide, Paper No. 62 (pp. 341-350 in Presentation at May 30), Proc. of Eurock2012 (USB), Stockholm, May 27-30, 2012.
- ⑥ 永谷侑也・青柳和平・山川彩香・石田毅・奈良禎太・村田澄彦・陳渠・中山芳樹：超臨界二酸化炭素を含む粘性の異なる流体による水圧破碎試験，資源・素材学会春季大会講演集，pp. 281-284，2012年3月
- ⑦ 陳友晴・青柳和平・丹羽智哉・山川彩香・石田毅：超臨界二酸化炭素を用いた花崗岩の水圧破碎試験で生成したクラックの観察，平成23年度資源・素材関係学協会合同秋季大会（堺），企画発表・一般発表(A)講演資料(地球・資源編)，pp. 183-184，2011年9月
- ⑧ 青柳和平・丹羽智哉・山川彩香・石田毅・村田澄彦・深堀大介・陳渠・中山芳樹：超臨界及び液体状態の二酸化炭素を用いた水圧破碎試験，資源・素材学会春季大会講演集，企画編，pp. 企画41-44，2011年3月
- ⑨ 丹羽智哉・青柳和平・石田毅・深堀大介・村田澄彦・中山芳樹・陳渠：超臨界二酸化炭素による岩石の水圧破碎AE測定，平成22年度資源・素材関係学協会合同秋季大会企画発表・一般発表(A)講演資料，pp. 86-89，2010年9月

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他]  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

石田 毅 (ISHIDA TSUYOSHI)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：10232307

### (2) 研究分担者

村田 澄彦 (MURATA SUMIHIKO)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：30273478

(H21, H22)

### (3) 研究分担者

深堀 大介 (FUKAHORI DAISUKE)  
京都大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号：60456803

(H21, H22)

### (4) 研究分担者

薛 自求 (XUE ZIQU)  
京都大学・大学院工学研究科・講師  
研究者番号：90467449

(H21)