

## 砂堆積層中における細粒砂蓄積現象の実験的研究

### Experimental Study on the mechanism of particle clogging in the sandy sediment

学籍番号 47-136639 河田 諒

指導教員 佐藤 徹 教授

(平成 27 年 2 月 2 日発表)

Keywords: 細粒分, スキン形成, 可視化, 浸透率低下, ガラスビーズコア

Keywords: fine particle, clogging, visual study, permeability reduction, Glass-Beads Core

## 1. 緒論

### 1.1 社会的背景

19 世紀の産業革命以降, エネルギーの消費量は年々増加する一方で, 化石燃料を燃焼することで発生する温室効果ガスが地球温暖化の原因になると指摘されてきた. そのため 2000 年代半ばより, 原子力発電や自然エネルギーなどに期待がかかっていたが, 2011 年の福島第一原発事故以降, 日本の発電電力量における原子力発電割合が急激に減少した. その影響もあり, 2013 年度における発電電力量のうち火力発電が占める割合は 88.3%まで上昇した[1]. 一方で石油・石炭などの化石燃料の価格は, 輸出国の社会情勢に左右されやすい. そのため化石燃料の大半を輸入に頼っている我が国においては, 自国で生産できる資源を確保することが大変重要である.

近年, 日本の領海内の海底にメタンハイドレートと呼ばれる資源が多く賦存されていることがわかり, 国産の新エネルギーとして期待を集めている. メタンハイドレートは水分子の籠状構造の中に, ゲスト分子としてメタンを取り込んだ形をしており, 低温・高圧の条件で安定に存在する. 日本近海に賦存するメタンハイドレートは大きく砂層型と表層型に分かれ, 現在砂層型の開発が中心に取り組みされている. 砂層型ハイドレート開発の実フィールドの試験として, 2013 年 3 月に愛知県沖にて経済産業省主導の元, 第一回海洋産出試験が行われた. この試験は, 海面から約 1300 m の海底砂層に固体の形で賦存するメタンハイドレートを, 減圧法と呼ばれる手法で水とメタンガスに分離することで回収するものである. この方法により世界で初めて, 海底砂層型のメタンハイドレートの連続生産に成功した. しかし, 砂層内の砂の流出などにより, 生産試験は当初の予定よりも短い 6 日間で終了した. 今後, メタンハイドレートの長期安定生産を目指す上で, 砂や泥の流出, 地層での目詰まりによる生産効率低下など, 克服しなければならない技術的課題が数多く存在する[2].

### 1.2 細粒分の閉塞, およびスキン現象

砂層中の比較的粒径の小さい泥や細粒分が, 間隙を流れる流体により流動し, 孔隙内で目詰まりを起こす現象は石油の開発フィールドなどでも問題とされてきた. 特に砂層内で泥が詰まり, 極端に浸透率が悪くなった領域はスキンと呼ばれる. スキンが形成されてしまうと, 著しい生産障害を引き起こすことが知られている[3,4].

粒子の閉塞や目詰まりに関する既往の研究としては, フィルター材を通過する粒子の研究が盛んに行われてきた. フィルター材を通過する濃度の変化を, フィルター係数を用いて数式化したものや[5], 数理モデルを用いて理論化した研究例がある[6]. しかし, 海底砂層を模擬した骨格の中でスキンが形成されていく様子をリアルタイム観測した例はまだない.

そこで本研究の目的は, アクリル透明容器の中で海底砂層を模擬したコアをガラスビーズで構成し, コア内に泥と水の懸濁液であるスラリーを圧入して閉塞を起こす様子を観察し, スキン形成のメカニズムを推定することである.

## 2. 実験手法

### 2.1 実験装置

Fig.1 に本実験で使用した実験装置(日東高圧製)の設計図を記す. 本実験では内径 10 cm, 高さ 21 cm, 厚み 2~3 cm のアクリル円筒容器を用い, その内部に砂層を模擬したコアを封入した. アクリル円筒容器は上から見て円の中心から東西南北の方向にカットされ, 光の屈折を軽減できるような工夫がなされている. さらにアクリル容器の上部には SUS316 製のピストン付きの蓋が乗せられ, ピストンによって内部のコアに土被り圧に相当する軸圧をかけることがで

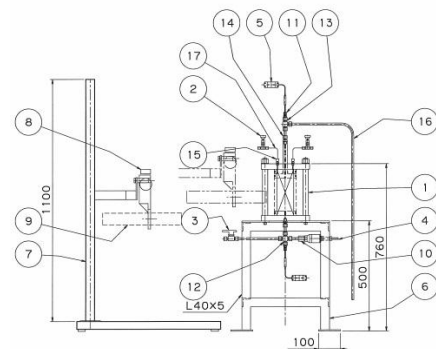


Fig. 1 Experimental Apparatus

きる。軸圧用のピストンは容量 100 ml シリンジポンプ(TELEDYNE ISCO 製)によって駆動され、一定の圧力でコア内に荷重を加えた。

また、コアの内部にスラリーを圧入するために、SUS316 製のスラリーポンプ(日東高圧製)と、スラリーポンプを駆動するための容量 500 ml のシリンジポンプ(TELEDYNE ISCO 製)を使用した。

さらに画像撮影用に、CCD カメラ(エドモンド・オプティクス・ジャパン 製)及び顕微レンズ(キーエンス製)を用いて、コア内部の蓄積過程をリアルタイムで撮影した。またいくつかのケースで、デジタルカメラ(Canon 製)によるその場観察も同時に行った。

## 2.2 実験試料

本実験では骨格材としてガラスビーズ BZ-01(アズワン社製、粒径 105~125  $\mu\text{m}$ )、及び拡散材として BZ-02(アズワン社製、粒径 177~250  $\mu\text{m}$ )を使い模擬砂層を構成した。スラリーとして流し込む細粒分として、カオリン(竹原化学工業製 Glomax LL 平均粒径 1.5  $\mu\text{m}$ )を用いた。

## 2.3 実験条件

本実験では、流し込むスラリーの質量パーセント濃度、および圧入流量を変えた計 9 種類の実験を行った。Table.1 に実験条件を示す。

## 2.4 実験手順

実験を始めるにあたり、まずガラスビーズに含まれる不純物取り除くために、ガラスビーズをビーカーに入れ、超音波洗浄機で約 55 分間洗浄した上で、90°Cの乾燥機で半日乾燥させた。

次に容器内にガラスビーズを密に詰めるために、振動を容器に加えることで粒子を液状化させる振動法を用いて、ガラスビーズコアの充填を行った。コア詰めを行う際は、初めに BZ-01 を高さ約 10 cm ほど充填し、その上部に拡散材として BZ-02 を高さ約 1 cm 充填した。BZ-02 を拡散材として使用した理由は、もし BZ-01 のみでコアを構成した場合、コアの入口付近で閉塞が起きてしまい、画像観測が困難になるためである。またガラスビーズの上下にはメッシュフィルターを設置することでガラスビーズの流失を防いだ。Fig.2 にコア構成の模式図を記す。

次にコア上面に土被り圧に相当する軸圧を載荷する。アクリル容器に上蓋を取り付け、100 ml のシリンジポンプによって一定圧力で蒸留水を送り出し、アクリル容器上蓋のピストンを駆動した。本実験においては全ての実験条件で 1 MPa の軸圧をかけてガラスビーズコアを固定した。

次に、コア内に蒸留水を通水することで絶対浸透率及び圧力計の補正値の計測を行った。絶対浸透率  $K$  ( $\text{m}^2$ )は Darcy の法則よりダルシー流速  $U_d$ (m/s)、圧力勾配  $dP/dx$ (Pa/m)および粘性係数  $\mu$ (Pa $\cdot$ s)を用いて以下で表される。

$$K = \frac{\mu U_d}{dP/dx} \quad (1)$$

蒸留水の通水によりコアの絶対浸透率、および圧力計の補正値を求めた後、各実験条件に合わせて調整したカオリンスラリーを流し込み、コア内で閉塞を起こす様子を観測した。本実験で流体は全て上から下に向けて流した。また同時にコア内を通過して出てきたカオリンスラリーを定期的にサンプリングし、コア内の残留量などを換算した。

## 3. 結果

### 3.1 スラリー圧入結果

本実験におけるカオリンスラリーの圧入結果、Table.1 で表される Case1 を除いた他 8 ケースで、急激に浸透率が低下するスキン現象が確認された。スキンの形成は実験ケースによってタイミングが異なったが、形成後の挙動はいずれのケースでも同様であった。スキンの形成位置は BZ-01 と BZ-02 の界面直下の約 1mm の領域に、コアの断面におおよそ平行な形で形成された。

またスキン形成後は初期にできたスキンのフロントより、入口側に向かってスキンが単調に発達していく様子が観測できた。

さらにスキン層が発達するにつれ、スキン層の一部に

Case	Kaolinight wt%	Flow rate
1	2 wt%	10 ml/min
2	2 wt%	20 ml/min
3	2 wt%	30 ml/min
4	5 wt%	10 ml/min
5	5 wt%	20 ml/min
6	5 wt%	30 ml/min
7	8 wt%	10 ml/min
8	8 wt%	20 ml/min
9	8 wt%	30 ml/min

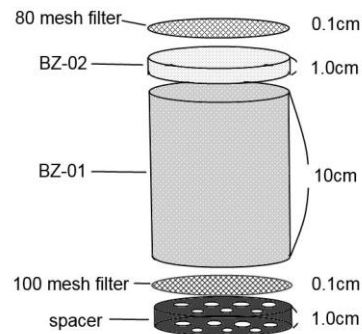


Fig. 2 Structure of the Glass Beads Core

亀裂が入り、その隙間から勢いよく流体が飛び出すフラクチャリングも観測された。

### 3.2 浸透率計測結果

本実験における各ケースの浸透率の変化を、コア内に投入したカオリンの重量ごとにプロットしたものを Fig.3-5 に示す。Fig.3-5 の横軸は、コア内に投入されたカオリンの累積投入量、縦軸は本実験において計測された絶対浸透率である。

Fig.3-5 を見ると、Table.1 の Case1(2wt% 10ml/min)を除く各ケースで、浸透率が急激に低下しているのがわかる。Fig.3-5 は流量ごとにグラフを分けているが、カオリンの累積投入量がある一定値を超えたところで閉塞が起きていると判断できる。

また同じ流量で比較すると、濃度が濃いものから閉塞に至っている。このことから、スキン形成の起こりやすさは濃度と流速の依存性があることがわかる。

しかし、流量 20 ml/min および 30 ml/min においては閉塞に至るまで 20~40 g 程度で閉塞に至っているのに対し、流量 10 ml/min のケースはカオリンの累積投入量が 80-100 g に達した時点で閉塞しており、他のケースよりも極端に閉塞が起きにくいという結果となった。

### 3.3 閉塞の過程

本実験ではスキンの形成過程をリアルタイムで撮影した。その結果、スキン形成に至るまで大きく分けて 3 つの段階があると判断した。

#### (A)安定域

安定域において浸透率はほとんど変化せず、ガラスビーズ骨格の周りの性状も大きく変化しない。

#### (B)部分閉塞域

部分閉塞域に移行すると、撮影している画像においてガラスビーズの周りがまばらに白色を呈し始める。また、この時浸透率が半分程度まで下がり始める。

#### (C)完全閉塞域

完全閉塞域において浸透率は 100 分の 1 程度まで急激に低下する。画像観測においては、BZ-01 と BZ-02 の界面下約 1 mm の場所において、スキンのフロントラインが顕在化し始める。スキン形成以降さらにカオリンスラリーの圧入を続けても、スキンのフロントラインの位置は大きく変化せず、カオリンはフロントラインの上部(入口側)に向かって、雪の様に蓄積していく。

画像観測と浸透率の計測により、以上の様なスキン形成の過程が観測された。

## 4. 考察

### 4.1 既往の目詰まりのモデルとの比較

Kenny and Lau(1985)は砂の累積粒度分布において、5%粒径の 1/4 が間隙くびれ径とし、間隙くびれ径より大きい砂は目詰まりを起こすというモデルを提案した[7,8]。本実験ではほぼ単一粒径と見なせるガラスビーズとカオリンを用いたため、このモデルの適用が適切かどうか定かでない。また BZ-01 をコアの 5%粒径とすれば間隙くびれ径はおよそ 25  $\mu\text{m}$  程度となるため、このモデル上ではカオリンは閉塞せず、間隙を通過できるはずである。

しかし、カオリン粒子は平板上の形をしているため、粒子のエッジと面でそれぞれ逆符号の電荷を持つ場合があることが知られている。カオリン同士が重合した構造はカードハウス構

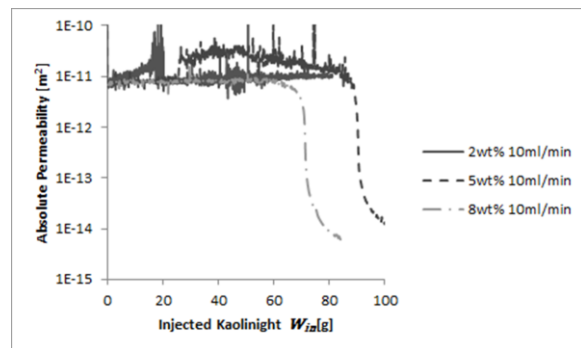


Fig. 3 Permeability Reduction Case1,4,7

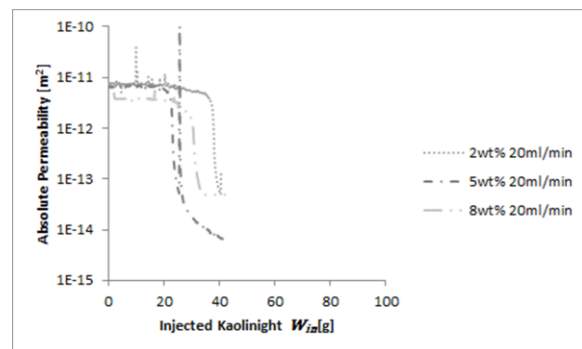


Fig. 4 Permeability Reduction Case2,5,8

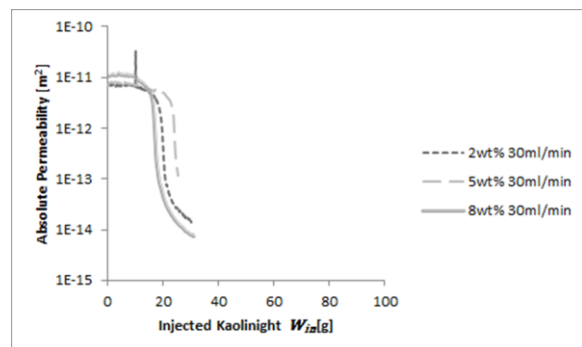


Fig. 5 Permeability Reduction Case3,6,9

造と呼ばれる[9]. つまり, カオリンの粒子同士に電氣的な吸着力が働き, 大きな塊となって流動し, 目詰まりを起こした可能性が考えられる.

#### 4.2 スキンの形成過程

次にスキンが形成される過程を考察する.

まず前章における(B)部分閉塞域で, ガラスビーズの周りがまばらに白く見える現象が確認された. 本実験で観測されたケースの中に, スキンのフロントラインが発達していく過程で, 一瞬でガラスビーズ全体が白くなる場合があることや, スキン形成後のカオリンの色よりもガラスビーズの白色の方が明るいという結果が得られた. そのためガラスビーズの白色はカオリンが表面に付着しているためではなく, カオリンの目詰まりによってガラスビーズが光を反射したために生じたものと結論付けた.

Fig.6はCase 9におけるスキン形成後の画像である. 画像は見やすさのため, コントラストを調整している. 画面の中央付近, 水平方向に白いスキンのフロントラインが形成されている. またスキンのフロントライン前後にあるガラスビーズで白く見えるものが数個あるが, このガラスビーズの裏面で目詰まりを起こしたカオリンが, 光を反射しているため白く見えると考えられる.

さらに前章で述べたフラクチャリングによって, スキンのフロントライン直下のガラスビーズの白色が解消される現象もいくつかの実験条件で確認された.

以上の事より, スキンの形成過程は次の様に推定される. まず(B)部分閉塞域で時間が経つにつれ, まばらにガラスビーズの孔隙に目詰まりが起こり始める. 目詰まりを起こす位置はある程度ばらつきがあると考えられるものの, 目詰まりが多く発生した断面では孔隙流速が速くなるため, その断面で爆発的に目詰まりが進行するものと考えられる. その結果スキンが断面状に形成され顕在化する. スキン形成後は圧力が高くなり, フラクチャリングが起きて, スキンのフロントライン直下の目詰まりは速い流速の流れで押し流されると考えられる. 以上の過程により, 断面に平行なスキンが形成されると考えられる.

#### 4. 結論

本実験ではアクリル透明容器に地層を模擬したガラスビーズコアを封入し, 濃度, 流量を変えたカオリンスラリーの圧入によって, スキン形成を画像観測した. その結果, 画像データと浸透率の低下を関連付けることができた. さらに流量が小さい場合, スキン形成が起きるまで極端に時間がかかるため, 速度の依存性が大きいことが示唆された. また画像データからスキン形成の時系列を推定した. 今後さらに速い流量での実験や, 粒度分布を持つコアでの検証が必要である.

#### 謝辞

本論文を制作するにあたりお世話になりました先生方, 支えてくださった皆様に心から感謝申し上げます.

#### 参考文献

- [1] 電気事業連合会  
[http://www.fepc.or.jp/about\\_us/pr/pdf/kaiken\\_s1\\_20140523.pdf](http://www.fepc.or.jp/about_us/pr/pdf/kaiken_s1_20140523.pdf).
- [2] 山本晃司, 寺尾好弘, 藤井哲哉, 他: 南海トラフにおけるメタンハイドレートの第1回海洋産出試験作業, 第5回メタンハイドレート総合シンポジウム資料, pp.77-78, 2013.
- [3] 山本晃司, メタンハイドレートの生産手法とフィールド産出試験, 地学雑誌, vol.118, no.1, pp.913-934, 2009.
- [4] 露木健一郎, 田島大輔, 藤田雄一, 他: 超音波による生産障害対策技術の研究 -細粒分による目詰まり形成について-, 第5回メタンハイドレート総合シンポジウム資料, pp.47-53, 2013
- [5] T. Iwasaki, Some notes on sand filtration, American Water Works Association, vol 29, no10, pp.1591-1602, 1937.
- [6] R.I.Mackie, R.M.Horner, and R.J.Jarvis,, Dynamic modeling of deep-bed filtration, AIChE Journal, vol.33, no.11, pp.1761-1775, 1987
- [7] T.C.Kenny, and D.Lau, Internal stability of granular filters, Canadian Geotech Journal, vol.22, pp.215-225, 1985
- [8] 杉井俊夫, 山田公夫, I.Buddhima, 粒状性フィルター材の透水性の評価, 中部大学工学部紀要, 第44巻, 2008
- [9] R.Goh, Y.K.Leong, B.Lehane, Bentonite slurries -zeta potential, yield stress, adsorbed additive and time-dependent behavior, Rheologica Acta, vol.50, no.1, pp.29-38, 2011

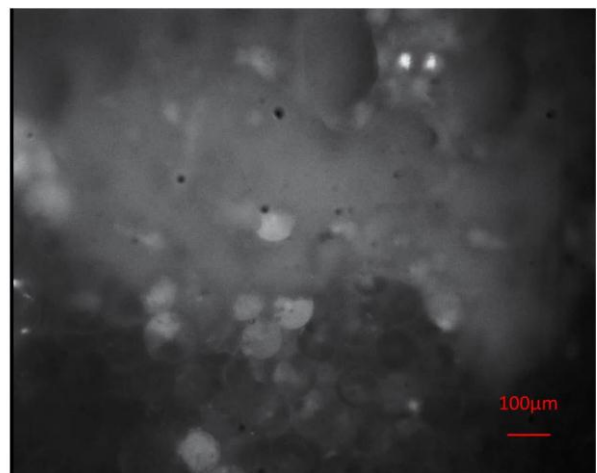


Fig. 6 Formation of Skin