

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31日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2012

課題番号：21310053

研究課題名（和文） 残留ガストラップによる安定型 CO₂ 地下貯留法の開発研究課題名（英文） R&D on Stable CO₂ storage by means of capillary trapping

研究代表者

末包 哲也（SUEKANE TETSUYA）

東京工業大学・大学院総合理工学研究科・教授

研究者番号：30262314

研究成果の概要（和文）：

温暖化の防止を目的として CO₂ 地下貯留が提案されている。最初、CO₂ は塩水で満たされている多孔質岩石中を浸透する。この過程は毛管力、浮力、粘性せん断力に強い影響を受ける。次に、CO₂ は再び塩水で浸透されるが、一部の CO₂ は毛管力により岩石多孔質中にトラップされる。さらに、岩石中にトラップされた CO₂ の気泡は徐々に塩水中へ溶解していく。溶解により重くなった塩水は貯留層スケールで自然対流を開始する。本研究ではこれらの一連のプロセスをモデル化するために X 線 CT 装置を用いた空隙スケール計測を行った。CO₂ の長期挙動予測を可能にするモデル化を行った。

研究成果の概要（英文）：

Carbon dioxide (CO₂) is injected into geological formations to mitigate climate change. First, CO₂ displaces brine which fills pore space of porous rock. This process is strongly influenced by capillarity, buoyancy and viscous shear stress. Next, brine displaces CO₂ again, but some fraction of CO₂ would be trapped in porous rock because of capillarity. Then trapped CO₂ bubbles would be solved into the brine. In a reservoir scale, dissolution of CO₂ into the brine is limited by the natural convection due to the density differences between unsaturated and saturated brine with CO₂. We experimentally investigated these processes in a pore scale by means of X-ray computer tomography. To predict long-term fate of the injected CO₂, novel mathematical models were developed for each process.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	4,300,000	1,290,000	5,590,000
2010 年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2011 年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2012 年度	2,300,000	690,000	2,990,000
年度			0
総計	14,100,000	4,230,000	18,330,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境技術、環境材料

キーワード：環境保全技術

1. 研究開始当初の背景

CO₂ 地下貯留技術は世界各地で数例の実用化が始まっている。我が国でも CO₂ の排出を抑制する技術として地下貯留を早急に実用

化する必要に迫られている。

地下に貯留された CO₂ は超臨界状態となり、周囲に存在する水よりもわずかに軽いために浮力を受け、地表へと移動しようとする。よってこれを防ぐには何らかのトラップメカニズムが働く必要がある。主要なトラップメカニズムとして、図 1 に示すようにキャップロックと呼ばれる蓋の役割を果たす地質構造による物理トラップがある。このトラップのみにより CO₂ を貯留するには、キャップロックがドーム型の構造である必要があり、我が国周辺の地質構造から考えて、物理トラップだけから十分な貯留量を確保することは難しい。また、キャップロックに検出できない亀裂が存在する場合、CO₂ が漏洩する可能性がある。

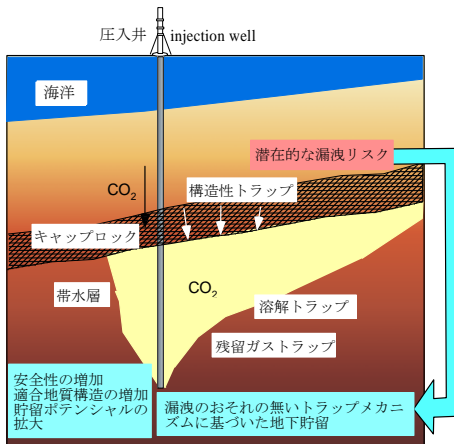


図 1：地下貯留におけるトラップメカニズムと提案するトラップの概念

地下に注入された CO₂ は以下のような経緯をたどると考えられている。まず、CO₂ は塩水（以下、水）で満たされている多孔質媒体中に圧入され、水を押しよけながら多孔質中に侵入する（排水過程）。CO₂ の注入が終了すると、CO₂ は浮力の影響を受けて移動するために、多孔質中に再び水が侵入する（吸水過程）。この過程において CO₂ はすべて多孔質から排出されず、一部は毛管力の影響によりトラップされる。これを残留ガストラップと呼ぶ(図 2)。トラップされた CO₂ 気泡は安定的に多孔質中に存在すると考えられる。周囲の水はすぐに CO₂ と溶解平衡に達する。水に流れがあると CO₂ は徐々に水の中に溶解する。CO₂ が溶解した水は溶解していない水に比べて重いため貯留層スケールでの自然対流が発生し、これが溶解速度を決定すると考えられている。これらのトラップメカニズムを複合的に利用すれば、キャップロックは必ずしもドーム構造である必要が無く、我が国周辺に広く分布している地質構造を利用することが可能になる。

2. 研究の目的

残留ガストラップ量は岩石種のみならず温度・圧力に伴う CO₂ の物性の変化の影響を強く受ける。よって、様々な条件における残留ガストラップ量を計測することにより、トラップ量の予測手法を確立する。また、残留ガストラップに基づく地下貯留の安定性・安全性を評価するには、残留ガストラップ現象の理解が必要不可欠である。本申請では、マイクロスケールでの計測を通じて残留ガストラップのメカニズムを解明する。さらに、残留ガストラップ量を最大化する効果的な CO₂ 注入手法の開発を行う。

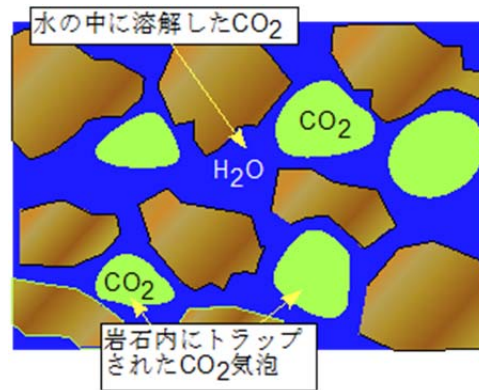


図 2：微視的に見た漏洩のおそれの無い、安定なトラップ。

3. 研究の方法

研究の実施にあたっていくつかのサブテーマを設定した。まず、残留ガストラップ現象に注目して、トラップメカニズムを調査するために、トラップ現象の可視化を行った。また、残留ガス飽和率に与える初期ガス飽和率の影響に注目して、ガス注入時の挙動をモデル化した。次に、トラップされた CO₂ の溶解現象のモデル化を行った。これらのプロセスを引き起こす自然対流の観察をあわせて行った。

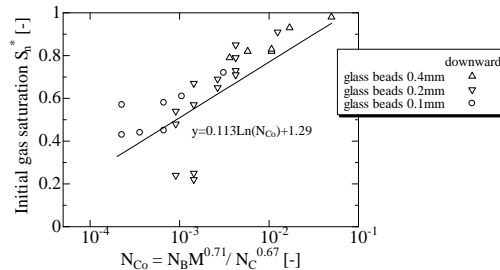


図 3：鉛直下向き注入時のガス飽和率のモデル化

4. 研究成果

ガス注入過程のガス飽和率は浮力や界面

不安定現象の影響を強く受ける。均質な多孔質内の場合、上向きおよび下向き注入に対してキャピラリー数およびポンド数の関数として初期ガス飽和率を表すことができることを示した。図3は一例として鉛直下向き注入時の残留ガス飽和率をキャピラリー数とポンド数の関数として実験式を得た例を示している。鉛直下向きの場合は、浮力が界面を安定化するために、比較的分散の小さい良好な実験式を得ることができた。一方、鉛直上向きの場合は、浮力により界面に発生した不安定現象が強調されるために、ガス飽和率は低く、また、分散も大きい。残留ガス飽和率にあたる初期ガス飽和率の影響は非常に強いために、残留ガストラップ量を推定する上でこれらの知見は重要である。

実際の地下の条件である高温高压状態において超臨界CO₂を充填層に圧入し、残留ガストラップした状態をX線CTにより微視的にポアスケールで可視化した。図4はいくつかの粒子径の異なる充填層におけるトラップされた超臨界CO₂気泡を表示している。また、これらの計測データに基づいて、残留ガス飽和率はポンド数で整理することができることを示した。さらに、トラップされていた気泡サイズの統計的性質についても明らかにした。この情報は、次に述べる多孔質内部の物質輸送現象と密接な関係がある。

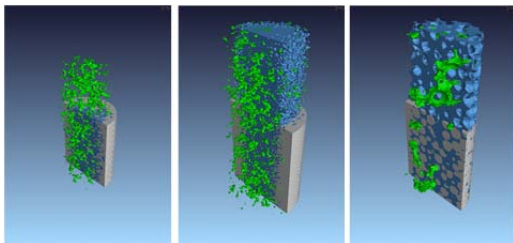


図4:空隙スケールでの超臨界CO₂のトラップ現象の可視化。

多孔質内の物質移動現象をこれまでに行われてきていた体積平均的なモデルではなく、よりミクロスケールの流動を加味したモデル化にするために、多孔質内部の溶解現象をX線CT装置で直接可視化した。この方法により、これまでに別々に評価することができなかった物質伝達係数と比表面積を独立に評価した。これらの値に対して、無次元パラメータを用いて相関式を導出した。多孔質内の流動現象の物理を反映したモデル化の方法論を確立した。図5は評価を行った物質伝達係数を示している。同様な評価を超臨界CO₂に対しても行っており、モデリングのための方法論を確立するに至った。今後は、より多様な多孔質媒体を対象としたモデル化

を行う予定である。

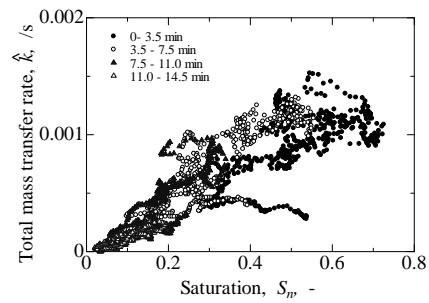


図5:空隙スケール計測より明らかになった多孔質内部での物質輸送現象のモデル化。

密度差に伴う自然対流を可視化した。プラスチックパーティクルの充填層において、CO₂が溶解した水を模擬した塩水と純水の間に生ずる密度差自然対流をX線CT装置により可視化した。これは、X線CT装置が溶液中の塩分濃度に比例した画像を取得できることを利用している。図6に示すように、重い塩水（色つきで表示）と純水の界面に乗じる不安定性に伴って、直径約5mmのフィンガーの成長が観察されている。この直径は線形安定解析から得られる臨界波長より数倍大きい。自然対流の過程を1次元の拡散として近似し、有効拡散係数の評価を行った。有効拡散係数は10⁻⁶から10⁻⁵ m²/sのオーダーであり、分子拡散係数より3-4桁大きい。

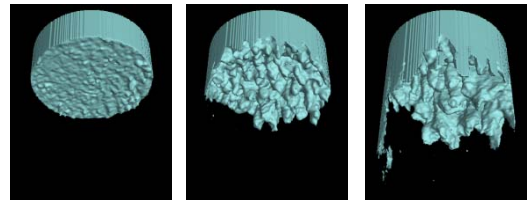


図6:多孔質内部での混和する二相の密度差自然対流の可視化

以上のように、岩石多孔質中に注入された超臨界CO₂に伴う移流・溶解・拡散現象をX線CT装置を用いて空隙スケールで可視化することにより、これらの諸現象のモデル化を行った。これらのモデルは地下に注入されたCO₂の長期挙動を予測するために活用することができる。残留ガストラップ、溶解はともにトラップメカニズムとして作用する。これらのメカニズムによりCO₂がトラップされる量を推定することができる。

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 3 件)

- ① Zhou, N., Suekane, T., Hosokawa, T., Inaoka, S., Wang, Q., In-situ capillary trapping of CO₂ by means of co-injection, *Transport in Porous Media*, 査読有, Vol. 90, No. 2, 2011, pp. 575-587
DOI: 10.1007/s11242-011-9800-3
- ② Zhou, N., Matsumoto, T., Hosokawa, T., Suekane, T., Pore-Scale visualization of gas trapping in porous media by X-ray CT scanning, *Flow Measurement and Instrumentation*, 査読有, Vol. 21, 2010, pp.262-267
DOI: 10.1016/j.flowmeasinst.2010.05.002
- ③ Suekane, T., Zhou, N., Hosokawa, T., Matsumoto, T., Direct observation of gas bubbles trapped in sandy porous media, *Transport in Porous Media*, 査読有, Vol. 82, No. 1, 2010, pp. 111-122
DOI:10.1007/s11242-009-9439-5

〔学会発表〕 (計 16 件)

- ① Suekane, T., Okada, K., Gas injection in a water saturated porous medium: effect of capillarity, buoyancy, and viscosity ratio, 11th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, November 18 – 22, 2012, Kyoto, Japan
- ② Zhou, N., Yang, J., Takehana, K., Suekane, T., Wang, Q., Numerical study of the effect of pore geometry on non-wetting phase trapping in porous media, 7th International Symposium on Multiphase Flow, Heat Mass Transfer and Energy Conversion (ISMF2012), October 26-30, 2012, Xi'an, China
- ③ Pentland, C., Okada, K., Suekane, T., Iglauer, S., The influence of pore space geometry on residual carbon dioxide trapping, 2012 SPE Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition, 2012 APOGCE, October 22-24, 2012, Perth, Australia
- ④ Suekane, T., Kitani, T., Kusano, K., Deguchi, Y., Natural convection of miscible two phases due to density difference in saturated porous media, 4th International Conference on Porous Media and Its Applications in Science and Engineering, ICPM4, June 17-22, 2012, Potsdam, Germany
- ⑤ Suekane, T., Application of X-ray CT scanning to the measurement of CO₂ migration and dissolution in geological storage, International Workshop on X-ray CT Visualization for Socio-Cultural & Engineering Environmental Material, December, 7-8th, 2011, Kumamoto University, Kumamoto invited.

- ⑥ Suekane, T., Trapping mechanisms of CO₂ in geological formations, 2011 International Workshop on Heat Transfer Advances for Energy Conservation and Pollution Control, 17-20 October, 2011, Xi'an, China invited – keynote
- ⑦ Zhou, N., Suekane, T., Hosokawa, T., Nguyen, H.T., Wang, Q.W., Capillary trapping of carbon dioxide storage in geological formations, 2011 International Workshop on Heat Transfer Advances for Energy Conservation and Pollution Control, 17-20 October, 2011, Xi'an, China
- ⑧ Suekane, T., Okada, K., Pore scale imaging of supercritical CO₂ trapped by capillarity in porous media, 4th International Workshop on Process Tomography, 21st-22nd September, 2011, Chenghu, China
- ⑨ Suekane, T., Mechanisms of capillary trapping of CO₂ at pore scale, the 2nd International Environment Forum for CCS, 4th-5th, July, 2011, Seoul, Korea invited.
- ⑩ Suekane, T., Izumi, T., Okada, K., Capillary trapping of supercritical CO₂ in porous media at the pore scale, 6th International Conference on Computational and Experimental Methods in Multiphase and Complex Flow, 15th-17th June, 2011, Kos, Greece
- ⑪ Suekane, T., Application of X-ray CT scanning to the measurement of pore-scale trapping and migration in CO₂ geological storage, International Workshop on X-ray CT Visualization for Socio-Cultural & Engineering Environmental Material, November, 18-19th, 2010, Kumamoto University, Kumamoto, invited
- ⑫ Suekane, T., Zhou, N., Hosokawa, T., Maximization of capillary trapping ratio to injected CO₂ by means of co-injection, *Energy Procedia*, Vol. 4, (2011) pp.4260-4266, 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies GHGT-10, 19th-23rd September 2010, Amsterdam, Netherlands
- ⑬ Zhou, N., Hosokawa, T., Suekane, T., Wang, Q.W., Experimental study of capillarity trapping on the pore scale for various sandstone cores, *Energy Procedia*, Vol. 4, 2011, pp.5017-5023, 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies GHGT-10, 19th-23rd September 2010, Amsterdam, Netherlands
- ⑭ Zhou, N., Hosokawa, T., Matsuda, M., Suekane, T., Wang, Q.W., Experimental and numerical investigation of gas trapping by capillarity in CO₂ geological storage,

International Conference on Applied Energy, 21-23 April 2010, Singapore, Singapore

- ⑮ Suekane, T., Mechanism of residual gas trapping from a microscopic viewpoint, UK-Japan Workshop on Environmental Impact Assessment of Carbon Storage, British Embassy Tokyo, 12-13, January 2010, invited
- ⑯ Suekane, T., Current our understandings on global warming and the carbon dioxide capture and storage as a mitigation option, Summer Course, Xi'an Jiaotong University, Aug. 18,19, 2009, Xi'an, China, invited

[図書] (計 2 件)

- ① Suekane, T., Ushita, H., Effect of buoyancy on pore-scale characteristics of two-phase flow in porous media, In: *Computed Tomography – Special Applications* (ed.) L. Saba, Intech, ISBN: 978-953-307-723-9 (2011) pp.179-194
- ② Suekane, T., Izumi, T., Okada, K., Capillary trapping of supercritical CO₂ in porous media at the pore scale, In: *Computational Methods in Multiphase Flow VI*, (ed.) AA. Mammoli, CA. Brebbia, WIT-Press, ISBN: 978-1845645182 (2011) pp. 311-320

6. 研究組織

(1) 研究代表者

末包 哲也 (SUEKANE TETSUYA)
東京工業大学・大学院総合理工学研究科・教授
研究者番号 : 30262314

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし