

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24年 5月31日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760144

研究課題名（和文） 高解像度X線CTを用いたCO₂地中貯留プロセスの三次元マルチスケール解析研究課題名（英文） Three-dimensional multi-scale analysis of CO₂ geological storage by using a high-spatial resolution X-ray CT

研究代表者

植村 豪 (UEMURA SUGURU)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：70515163

研究成果の概要（和文）：

CO₂地中貯留においては、帯水層の砂岩多孔質中における水-CO₂の二相流の理解・予測が必要不可欠である。このため本研究では、マイクロフォーカスX線CTが幅広い大きさのサンプル内部を三次元で観察できる特徴を利用して、スケールの異なる二種類の多孔質サンプルを用いたCO₂のミクロ・マクロ挙動の双方をマルチスケールで観察し、その流動メカニズムについて調べた。さらに得られたCO₂流動メカニズムの知見を元に、ナノスケールCO₂液滴による安定性を能動的に向上させた地中貯留手法を開発した。

研究成果の概要（英文）：

CO₂ geological sequestration is required to clarify the CO₂/water two-phase flow in aquifer. In this study, multi-scale visualization of CO₂ behavior in a porous media was performed by using a microfocus X-ray CT. Upward migration phenomena of CO₂ was successfully observed, and migration speed was compared with theoretical model. Additionally, stable geological storage technique with employing nano-scale CO₂ droplet was developed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学（5005）

キーワード：二酸化炭素，地中隔離，多孔質，二相流

1. 研究開始当初の背景

(1)二酸化炭素（CO₂）に代表される、温室効果ガスの排出量削減は近年の重要な国際的課題であり、化石燃料以外の新エネルギー開発や大気中CO₂濃度の上昇を防ぐ技術の構築が求められている。しかしながら世界的な一次エネルギー需給は依然として化石燃料の消費量が增大すると予想されており、特に供給量が安定している石炭を始め、今後も10

～20年は化石燃料の消費が続くことが予測されている。このため、排出される膨大なCO₂の削減技術として、火力発電所などの大規模排出源からCO₂を回収して地中に貯留する二酸化炭素回収貯留（Carbon Capture and Sequestration, CCS）が注目されている。特に地中貯留技術は従来の天然ガス掘削や原油増進回収技術（EOR）が応用できるため、実用化に最も近い技術として期待されている。

既に海外では地下の帯水層と呼ばれる地層構造に CO₂ を圧入し、年間 100 万トンの CO₂ 貯留も実施されているが、多数の課題が残されている。

2. 研究の目的

(1) 図 1 に CO₂ 地中隔離の概念図を示す。CO₂ 地中貯留においては、CO₂ の挙動や貯留量を推定する上で、地下帯水層における水-CO₂ の二相流の理解が必要不可欠である。本研究では、高解像度（マイクロフォーカス）X 線 CT を用いて実験室レベルで砂岩内の CO₂ 挙動を可視化し、地下帯水層における CO₂ の浸透・浮上メカニズムの解明を目指す。地下約 1000 m に分布している帯水層は、空隙率約 20 %、空孔径 10 μm 程度の砂が圧縮された多孔質構造で、空隙部分には化石水が満たされている。CO₂ を圧入すると、周囲の温度、圧力条件によって CO₂ は液体または超臨界状態となり、二相流を呈しながら微細な空隙内を浸透、浮上する。この CO₂ 流動過程は帯水層の空孔径分布条件によって大きく異なると予測されているが、観察が困難なために詳細な流動メカニズムは解明されていない。さらに砂岩の空孔径分布が 1 - 100 μm 程度であるのに対し、CO₂ は 1 - 100 万トンも圧入されることから、帯水層における CO₂ の挙動をミクロスコピック、マクロスコピック双方の視点から観察する必要がある。そこで本研究では、マイクロフォーカス X 線 CT がサンプルサイズと空間分解能に線形な比例関係がある特徴を応用し、スケールの異なる多孔質内における CO₂ 流動の三次元マルチスケール解析を行い、CO₂ 地中貯留プロセスを解明する。

(2) さらに安定性を向上させた地中隔離として、図 1 に示すようにナノスケールまで微粒化した液体 CO₂ を帯水層に圧入し、浮力を分散させた安定性の高い地中隔離手法を提案する。実際に高压水中でナノスケール CO₂ 液滴を生成し、粒径分布の時間発展現象の観察および経時変化に対する安定性を調べる。さらに帯水層を模擬した多孔質内にナノスケール CO₂ 液滴を圧入し、X 線 CT 法を用いて多孔質内部における挙動を観察した。

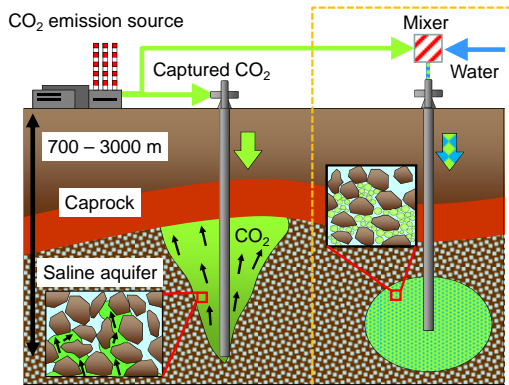


図 1 従来の CO₂ 地中隔離と安定性向上

3. 研究の方法

(1) 本研究ではマイクロフォーカス X 線 CT を用い、砂岩内部における CO₂ の挙動についてミクロ・マクロ双方の視点からの可視化解析を行い、CO₂ 流動メカニズムを解明する。浮力による CO₂ 上昇過程については、図 2 に示すような循環系の実験装置を用いた。実験条件は表 1 に示す組み合わせで行った。

実験装置は主に粒子充填層、配管、X 線 CT、シリンジポンプから構成されている。実験ではまず循環系内を全て水で充填し、その後、シリンジポンプで充填層下部まで空気、又は CO₂ を注入した後、充填層上部に設置したバルブを開放する。二相の流体の密度差を駆動力（浮力）として移流が生じ、空気、又は CO₂ は多孔体内を上昇する。なお、浮力の大きさは多孔体と配管底部の距離（高さ H ）の調整で制御できる。粒子充填層は X 線 CT の管体内部に設置し、X 線透過画像によるリアルタイム観察や、観察対象を回転させて CT 画像を撮影し、三次元再構成画像の取得が可能である。

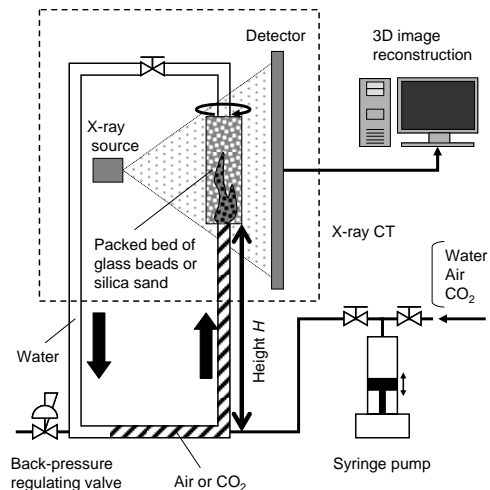


図 2 浮力駆動観察用実験装置

(2) 浮力による浮上観察では、表 1 に示すように二種類の実験を行った。実験 1 では、ノズルから注入された空気が上昇する際、容器壁の影響を受けずに鉛直、水平方向に移流できるよう、ノズル径よりも十分大きい直径 112 mm の容器を用い、三次元的な移流過程に着目した。配管の一部には透明チューブを用い、空気-水界面の移動を追跡することで、多孔質中への空気注入量を計測した。なお、CT 画像の取得には 6 min ほど要するため、撮影中は循環系のバルブを閉じ、移流が生じないようにした。また、実験 2 では実際の CO₂ 地中隔離条件を想定し、高压下において硅砂充填層中を上昇する CO₂ を観察した。なお、容器

には内径 6 mm のステンレス製パイプを用い、X 線 で水 と CO₂ を明確に区別するため、水には造影剤としてヨウ化ナトリウムを加え、移動速度は多孔質中の X 線透過画像から計測した。

表 1 実験条件および物性値

	Exp. 1	Exp. 2
Porous media	Grass beads	Silica sand
Test fluids	Water & air	Water & CO ₂
Gauge pressure	0 MPa	7.5 MPa
Density at 25°C (kg/m ³)	Water: 997 Air: 1.184	Water: 1667 (with 40 mass% NaI) CO ₂ (liquid): 734
Viscosity at 25°C (□Pa·s)	Water: 854.4 Air: 18.2	Water: 853.3 CO ₂ (liquid): 61

(3)CO₂ をナノスケール液滴にして多孔質中に圧入する実験では、図 3 に示す装置を用いた。高圧水中に液体 CO₂ を圧入し、スタティックミキサーを通過させながら循環させることで微粒化を行った。実験では界面活性剤(トリシロキサン)の濃度、水と CO₂ 液滴の体積比をパラメータとした。CO₂ 液滴の粒径はその大きさに応じて長距離焦点顕微鏡と動的光散乱測定装置を使い分けて測定した。さらにマイクロフォーカス X 線 CT を用い、多孔質内部における CO₂ 挙動を三次元で可視化した。水と CO₂ を明確に判別するため、造影剤(ヨウ化ナトリウム)を水に溶解させた上で前述の方法で液体 CO₂ を微粒化した後、多孔質内部に圧入した。圧入後、6 日間にわたって定温定圧条件を維持し、多孔質内部における CO₂ 液滴の挙動を観察した。

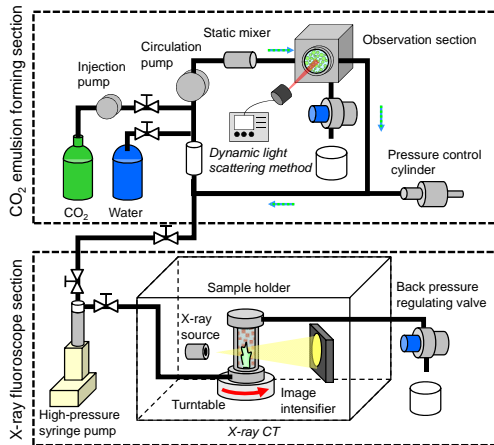


図 3 CO₂ 微粒化観察装置

4. 研究成果

(1)実験 1 について、水飽和させたガラスビーズ充填層中(平均粒径 430 μm)を浮上する空気挙動について、X 線 CT を用いた可視化解析を行った。図 4 に示した三次元再構成図から、空気先端の鉛直方向への進行速度は一定ではなく、複雑に入り組んだ形状を呈し

ながら浮上している様子が分かる。一方、図 5 の充填層内に入った空気量を見ると、ほぼ線形に増加しており、空気が鉛直、水平方向に不規則に広がりながらも、一定の移流量が維持されていることが示されている。

次に同じガラスビーズ充填層を用い、浮力の大きさを変化させた際の空気の移流量を調べた。図 6 に浮力と空気の浮上量の関係を示す。浮力が 2600 Pa 以下では毛管圧の方が大きいために空気の浮上は観察されなかった。小さな空気の塊は多孔質中で浮力によって自発的に浮上せず、トラップされることが分かる。空気が浮上するだけの浮力が加わると、浮力の増加に伴って空気の移流量も増える傾向が見られる。ただし粘性力も浮力と共に増加するため、移流量には上限値が存在すると考えられる。

一方、球充填層中での浮上を一次元にモデル化して解析したところ、時間に対する空気の浮上量はほぼ一定となり、実験と定性的に一致する結果が得られた。さらに実際に空気が移流している有効断面積を算出すると、本実験条件下では約 0.1 mm² となり、充填層内の平均的な空隙断面積と同程度であった。空気はその大きさを拡大させながら浮上しているが、空気の内部ではごく一部の空隙が移流に寄与していると考えられる。

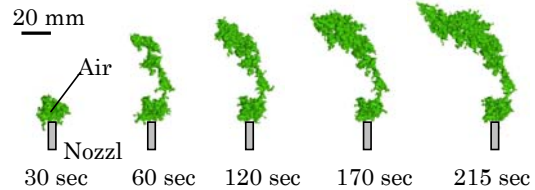


図 4 水飽和多孔質中の空気の三次元分布

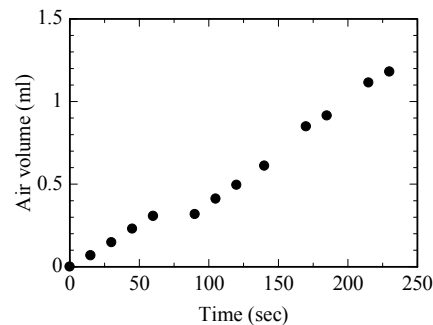


図 5 空気注入量の時間変化

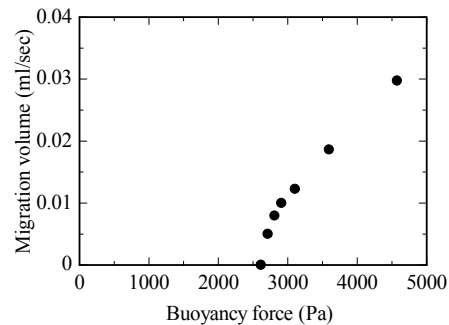


図6 浮力に対する空気移流量

(2)実験2について、4種類の異なる粒径の珪砂を用い、それぞれの珪砂を充填した多孔質中を同じ浮力(8200 Pa)で浮上するCO₂の上昇速度の計測と三次元分布の観察を行った。図7より、珪砂の粒径が小さいほど空隙径も小さくなるため、毛管力、粘性力による抵抗が増え、CO₂の上昇速度が減少している。特に平均粒径75 μmの珪砂充填層では、設定した浮力ではCO₂は浮上せず、トラップされた状態となった。

三次元再構成画像から、CO₂は珪砂充填層のほぼ全域に分布している様子が見られる。前節では水平方向への自由度がある充填層では屈曲を伴った浮上過程が観察されていることから、より大きな珪砂充填層を用いた場合には本実験結果よりも浮上速度は遅くなることが考えられる。さらに実際の帯水層は様々な粒径の砂が凝集して構成されており、今回用いた珪砂充填層よりも空隙径が小さいと考えられ、浮上速度は1 mm/secよりも極めて遅いことが予測される。なお各粒径ごとに得られた三次元再構成画像から、CO₂飽和度が異なる分布が観察されており、今後は上昇速度に加えて多孔体内での飽和度も考慮したCO₂移動量の定量的な評価も必要である。

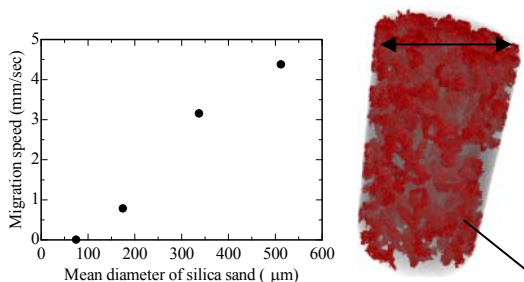


図7 CO₂の浮上速度とCO₂分布(珪砂粒約513 μm)

(3)液体CO₂をナノスケールまで微粒化する実験を行った。圧力6.0 MPa、温度15°Cのもとでスタティックミキサーへの流入速度を22.5 m/sに設定した。まず、水とCO₂液滴の体積比が1:1になる条件下で、水とCO₂の合計質量に対する界面活性剤濃度を変化させて微粒化実験を行い、ポンプ停止直後から動的な光散乱測定装置を用いて個数換算粒径分布の時間変化を計測した。

界面活性剤濃度0.5%の時の粒径分布の測定結果を図8に示す。ポンプ停止直後の液滴の粒径は大半が数十nmであり、時間と共に液滴は少しずつ成長し、ポンプ停止から50分が経過したところで、粒径分布のピークはより大きなピークとより小さなピークの2つに分岐した。粒径分布が変化するメカニズムには、複数の液滴が単一の液滴になる合一、あ

るいは液滴径に依存した局所的な溶解・析出による液滴径の増減(オストワルドライビング)が挙げられる。それぞれの現象の特徴から、ポンプ停止から40分までの間では合一によって液滴が単調に成長している一方、粒径の増減が同時に観測された40分以後はオストワルドライビングが支配的であると考えられる。

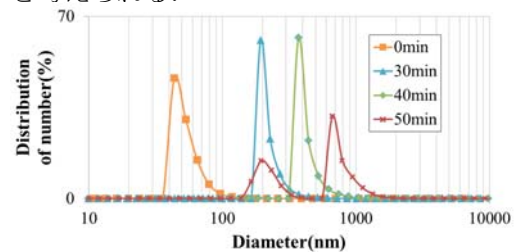


図8 CO₂液滴の粒径分布経時変化

(4)多孔質内部でのナノスケールCO₂液滴の挙動を観察するため、珪砂充填層内部にCO₂液滴を圧入し、X線CT画像からその経時変化を捉えた。図9はCO₂のみを抽出して三次元再構成した画像である。圧入直後は大半のCO₂液滴が空間分解能(20 μm)以下であるためにほとんど抽出されていないが、3日後にはCO₂液滴が空隙サイズまで成長しており、多孔質内部で均一に分散していることが分かる。この時の分布は6日後においてもほぼ同様であり、安定してトラップされていることが分かる。この結果から、ナノスケールCO₂液滴は多孔質内部に均一に浸透した後、空隙程度のスケールまで粒径が増加するものの、依然として液滴に働く浮力は小さいために、毛管力によって空隙中に安定してトラップされることが分かる。これはCCSを行うにあたり、ナノスケールCO₂液滴であれば帯水層内において安定して隔離できる可能性を示唆している。

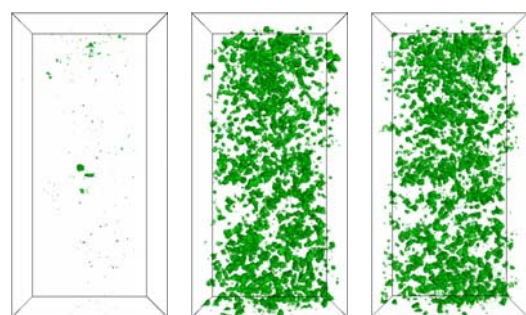


図9 CO₂の三次元空間分布(空間分解能20 μm)

(5)以上のように、水飽和させた多孔質充填層中を浮力によって上昇する流体挙動につい

て、X線CTを用いた可視化解析を行った。その結果、鉛直方向および水平方向に広がり、複雑に屈曲しながら浮力によって上昇する過程を捉えた。また浮力や空隙径と上昇速度との関係を調べ、帯水層内におけるCO₂浮上挙動について考察した。

一方、ナノスケールCO₂液滴を用いた安定地中隔離手法を提案し、液滴の生成および多孔質中での挙動について実験的に調べた。CO₂/水系に界面活性剤を少量添加し、スタティックミキサーを用いてCO₂を初期平均粒径で数十nmのナノスケール液滴に微粒化することに成功し、界面活性剤濃度および水とCO₂液滴の体積比が液滴の成長プロセスに影響を与えることが分かった。また、多孔体内部に圧入されたナノスケールCO₂液滴は空隙スケールの液滴まで粒径が増加するものの、浮力が小さいために毛管力によって安定してトラップされることを示した。

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1件)

①植村豪, 深堀大地, 津島将司, 平井秀一郎, マイクロフォーカスX線CTを用いた多孔質内CO₂浸透挙動の可視化解析, 日本機械学会論文集(B編), Vol. 78, No. 785, pp. 74-82, 一般社団法人日本機械学会, Jan 2012. (査読有)

[学会発表] (計8件)

(1) Atsuto Noda, Suguru Uemura, Shohji Tsushima, Shuichiro Hirai. "LBM of Supercritical-CO₂/Water Two Phase Flow in Geological Storage", CD-ROM The Fourth International Forum on Multidisciplinary Education and Research for Energy Science (The Fourth International Forum on Multidisciplinary Education and Research for Energy Science), Tokyo Institute of Technology, Energy-GCOE, Hawaii, Dec. 17-21. 2011.

(2) 野田豊人, 植村豪, 津島将司, 平井秀一郎. "地中隔離における多孔質内超臨界CO₂/水二相流動LBM解析", 熱工学コンファレンス講演論文集(熱工学コンファレンス2011), No. 11-36, pp. 335-336, 日本機械学会, 静岡 Oct 29-30. 2011.

(3) 植村豪, 片岡亮人, 鈴木雄大, 津島将司, 平井秀一郎. "地中隔離における多孔質内浮力駆動流体のX線CT可視化解析", 平成23年度石油技術協会春季講演会特別講演・シンポジウム・個人講演要旨集(平成23年度石油技術協会春季講演会), pp. 131, 東京

Jun8-9, 2011.

(4) 植村豪, 片岡亮人, 鈴木雄大, 津島将司, 平井秀一郎. "CO₂地中隔離における浮力駆動多孔質内流動のX線CT計測", 第48回日本伝熱シンポジウム講演論文集(第48回日本伝熱シンポジウム), Vol. I, pp. 63-64, 社団法人日本伝熱学会, 岡山, Jun1-3 2011.

(5) Suguru Uemura, Ryoto Kataoka, Daichi Fukabori, Shohji Tsushima, Shuichiro Hirai. "Experiment on laiquid and supercritical CO₂ distribution using micro-focus X-ray CT for estimation of geological storage", 10th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, Amsterdam, Sep. 23. 2010.

(6) 植村豪, 片岡亮人, 深堀大地, 津島将司, 平井修一郎. "地中隔離における砂岩内CO₂の高空間分解能X線CT計測", 第15回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集(第15回動力・エネルギー技術シンポジウム), 東京 Jun21-22 2010.

(7) 深堀大地, 植村豪, 津島将司, 平井秀一郎. "CO₂地中隔離における高空間分解能X線CT計測", 第47回伝熱シンポジウム, pp. 125-126, 札幌 May 26-28. 2010.

(8) 植村豪, 片岡亮人, 津島将司, 平井秀一郎. "超臨界・液体CO₂の高圧砂岩内X線CT計測—地中隔離におけるCO₂挙動の可視化解析", 第47回伝熱シンポジウム, pp. 127-128, 札幌 May 26-28, 2010.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

植村 豪 (UEMURA SUGURU)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号: 70515163