

平成 30 年 6 月 8 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2017

課題番号：25281036

研究課題名(和文) 空隙スケール現象計測に基づくCO₂地下貯留におけるトラップメカニズムの解明研究課題名(英文) Study on the trapping mechanisms in CO₂ geo-sequestration based on pore scale imaging

研究代表者

末包 哲也 (SUEKANE, TETSUYA)

東京工業大学・工学院・教授

研究者番号：30262314

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：二酸化炭素地下貯留における最大の懸念は浮力に伴う漏洩である。本研究では、多孔質内部の空隙スケール計測に基づいて漏洩を阻害するトラップメカニズムの解明を行った。キャピラリートラップ飽和率は初期ガス飽和率に強く依存するため、初期ガス飽和率を決定する界面張力、粘性、浮力の影響をモデル化し、トラップ量推定を可能にした。次に、溶解トラップに移行する上で支配的な現象となる自然対流現象のモデル化を行うとともに、分散現象(多孔質の複雑性に伴う見かけの拡散現象)が対流開始時間に強く影響していることを見出した。また、溶解に関する物質輸送現象を対象として、デジタルロック技術の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：One of the major concern of carbon dioxide capture and storage is potential risk of leakage due to buoyancy. In this study, we investigated the trapping mechanisms of CO₂ based on microtomography. A physical model of initial gas saturation accompanied with the competition among the interfacial tension, viscous shear force, and buoyancy was proposed, because residual gas saturation depends strongly on the initial saturation. The onset time of the natural convection, which governs the shift to dissolution trapping, is strongly impacted by dispersion, which is apparent diffusion due to complex structure of porous media. Mass transport process from the trapped phase to mobile phase was investigated with the direct numerical simulations for pore scale images.

研究分野：複合新領域

キーワード：二酸化炭素 地下貯留 トラップメカニズム 溶解 対流 物質輸送 空隙スケール

1. 研究開始当初の背景

CO₂排出抑制は世界的な合意となっており、欧米を中心に CO₂ 地下貯留の大規模な実証プロジェクトが進行している。CO₂ 地下貯留は大規模排出源から分離回収した CO₂ を地下 1000 - 5000 m に存在する塩水を含んだ岩石に注入・隔離する技術であり、大規模な CO₂ 削減が可能であると期待されている。一方、地下の高温・高圧状態で CO₂ の密度は高くなっているが、水に比べて依然として軽いために、圧入された CO₂ には浮力が働く。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、物理トラップ、毛管圧トラップ、溶解トラップ、鉱物固定化が考えられているが、これらの現象の理解は依然として定性的であり、これらのトラップメカニズムは発現する過程はほとんど理解されていない。

一方、近年のマイクロフォーカス X 線 CT 装置の急激な性能の向上により、いわゆるデジタル・コア・ラボラトリー概念が提案されている。従来方法では、地下から数 10 cm スケールの円筒形岩石コアを採取し、数ヶ月に及ぶ流動試験を経て、長期的な流動シミュレーションに用いられる相対浸透係数や毛管圧曲線といったマクロな流動モデルを得ている。デジタル・コア・ラボラトリーでは、岩石の多孔質構造を X 線 CT により 3 次元で計測し、従来の実験を空隙スケールの数値シミュレーションで置き換えて、マクロな流動モデルを得る。欧米では CO₂ 地下貯留に特化したデジタル・コア・ラボラトリーの整備が急速に進んでいる。

2. 研究の目的

二酸化炭素(CO₂)地下貯留技術の安全性の評価に必要不可欠となる岩石多孔質内部での CO₂ の移動・溶解・対流などのトラップメカニズムに関する物質移動現象を解明する。多孔質を空間スケールで平均化した従来型の現象論的なモデリングから脱却し、これまでに開発してきた多孔質の空隙スケールでの高解像度可視化技術を駆使することにより、ミクロスケールでの流体力学的な物理現象解明に基づいて CO₂ 地下貯留技術に関する多孔質内多相流の学術基盤を構築する。CO₂ 地下貯留の長期安定性評価と我が国における実用化に向けての提言を行う。高速高解像度 X 線 CT と数値解析手法を高度に融合することにより、地下貯留に関するデジタル・コア・ラボラトリー拠点の形成を目指す。

3. 研究の方法

本研究では、マイクロフォーカス X 線 CT の岩石内流動計測への適用した。ここで開発してきた X 線 CT 装置のコニークな点は、

- 1) コアを鉛直方向に設置できる(重力の影響を検討できる)
- 2) 高圧容器を設置できる(実際の超臨界 CO₂

条件で計測できる)

3) ダイナミック、スタティックの撮像モードが選べる(多様なコア試験を実現できる)である。研究を具体的に遂行する上で、CO₂ のトラップメカニズムの各段階に分けたサブテーマを設定した。

4. 研究成果

多孔質内物質輸送は、CO₂ 地下貯留における多孔質内にトラップされた CO₂ の地下水への溶解や重金属などの汚染物質による土壌汚染にみられる現象である。地下貯留において毛管力により残留ガストラップされた CO₂ の気泡は、水より濡れにくいので多孔質内で空隙の広い部分を占めようとする。トラップされた CO₂ 気泡は周囲の孔隙水と直ちに飽和し、溶解平衡状態となる。孔隙水が流動していない場合、CO₂ 気泡の溶解は孔隙水の中での CO₂ 分子拡散により支配される。一方、孔隙水に流動がある場合、溶解平衡状態にある飽和水が移流により取り除かれ、新たな孔隙水が供給されるために、対流が支配的な物質輸送現象が生じる。

多孔質内部にトラップされている CO₂ 気泡による流動している孔隙水での物質輸送現象は、その流動様式に関連する物質伝達係数とトラップされている CO₂ 気泡の比表面積の影響を受ける。従来の研究では、これら 2 つの因子を区別して評価することが困難であった。本研究では、X 線 CT 装置を用いることにより、多孔質内部の物質輸送現象を空隙スケールで可視化することにより、物質輸送を支配する物質輸送係数と比表面積を独立に評価することを試みた。空隙スケールにおける物質輸送現象の特徴を明らかにするとともに、物質輸送に与える流速の影響を明らかにした。

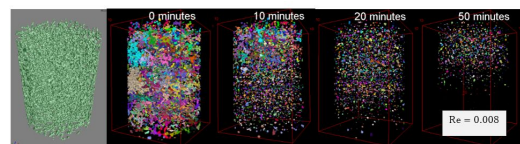


図1 多孔質内部にトラップされた CO₂ の気泡と水の流動により溶解していく過程の可視化。これらの 3 次元可視化情報を基に、比表面積と物質輸送をモデル化した。

湿潤相(WP)で満たされている多孔質媒体に非湿潤相(NWP)が浸透する場合、非湿潤相飽和率は粘性、浮力、界面張力の他に界面に発生する不安定現象に強く影響を受ける。均質な多孔質媒体を対象として、室内基礎実験を行い、飽和率に影響を与えるパラメータの抽出を行った。多孔質媒体の空隙スロート径の分布によるキャピラリーフィンガリングは流速の増大とともに粘性せん断力により影響がかき消され、キャピラリー数を用いて定式化することができる。また、WP と NWP の粘性比に伴うヴィスカスフィンガリングの

影響は粘性比をパラメータとして定式化でき、これらの2つのパラメータにより、キャピラリーフィンガリングおよびヴィスカスフィンガリングがNWPの飽和率に与える影響をモデル化できることを明らかにした。

このモデルの妥当性を検証するために、地下深度850mに相当する温度圧力条件で超臨界二酸化炭素および水を用いた系で模擬実験を行った。得られた結果は他の研究者により得られた結果を含めて今回新たに取得した実験式と良好な一致を示すことがわかった。

得られた実験式に浮力の影響を考慮するための拡張を行った。鉛直上向き注入の場合、置換界面はどのような注入速度、すなわちキャピラリー数においても重力的に常に不安定であり、今回取得した実験式が適用できることがわかった。一方、鉛直下向き注入の場合、注入流速が低い場合は重力的に界面が安定であるが、注入速度に臨界値が存在し、この速度を超えると界面に不安定現象が発生し、飽和率が低下することがわかった。この現象を考慮するには、キャピラリー数の他に、臨界重力排水速度を用いて排水現象の区別を行い、適用するモデル式を区別しなければならない。

Effect of Bond number on the NWP saturation

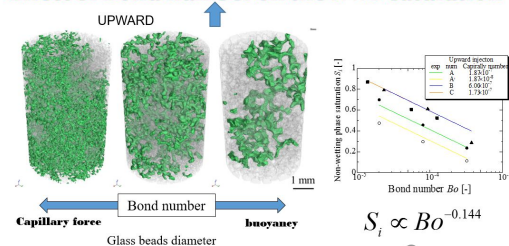


図2 浮力と界面張力の競合の様子。

CO₂が水に溶解するとわずかに重くなるために貯留層のスケールで大規模な自然対流が発生するといわれている。溶解に要する時間の推定には貯留層シミュレーターが用いられ数100年から数1000年の時間が必要であると考えられている。一方で、これらの推定精度には密度差自然対流を拡散現象で近似したモデル化に強く依存している。本研究では、多孔質内部3次元密度対流の可視化を行い、フィンガー構造の特徴を明らかにすると共に、物質輸送現象に対して分散現象が大きく寄与していることを明らかにした。

密度差自然対流において、界面における不安定性が成長するまでに要するオンセットタイムが存在する。発達した不安定性により、界面にはフィンガー構造が現れ、重力により成長する。次のような非線形効果が観察された。すなわち、フィンガーは互いに合体したり、先端が分裂したり、あるいは、先に成長したフィンガーにより他のフィンガーが遮蔽される。フィンガーの数密度はレイリー数と共に増加する。これは、線形安定理論の予測と一致する。フィンガーの進展速度、質量

流束、および、オンセットタイムはレイリー数により変化する。しかし、これに加えて分散がフィンガーの進展に大きく寄与しており、分散によりオンセットタイムは短くなり、質量流束は増加する。従来の予測より、地下におけるCO₂の溶解は速く進展する可能性があることが見いだされた。

Dispersion strongly impacts on finger structure

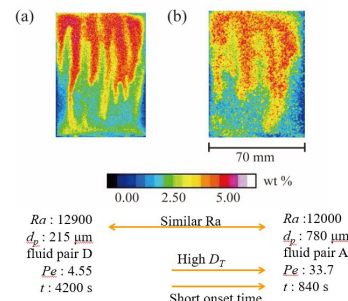


図3 レイリー-テイラー対流に与える分散の影響。同じレイリー数にもかかわらず、左右にて対流開始時間に大きな違いがみられる。

将来のデジタルロック技術に向けた数値解析の技術開発を行うために、CT画像からデジタルロックを生成し、ポアスケールの多相流解析および濃度分布解析を行った。3種類の多孔体を単相流解析したところ、それぞれの多孔質構造が流れ場に影響を及ぼしていた。ペレア砂岩は空隙率、絶対透過率ともに低く、配位数が1のポアが存在する複雑な構造を持ち、平均流速に対して流速のばらつきが大きいという特徴から、他の多孔体と比較して、レイノルズ数の増加率に対するシャーウッド数の増加率が小さいことが明らかとなった。また、飽和率の上昇による物質輸送への影響は各多孔体で傾向が異なった。飽和率の上昇に伴い相対浸透係数が減少し続けるペレア砂岩では飽和率の上昇と共に物質輸送は低下し、飽和率30%以降相対浸透係数の減少率が小さくなるプラスチックパーティクルとガラスビーズでは飽和率を上昇させても物質輸送は減少しないという傾向がみられた。貯留層シミュレーションで物質輸送の影響を含めた貯留層モデルを構築する際にも、本研究の解析法を適用し、流れの不均一性や局所的なよどみの影響を予測することで、より高精度な予測が可能になると考えられる。

研究背景と目的 計算手法と検証 多孔体の構造 飽和率の変化 CO₂周りの流れ

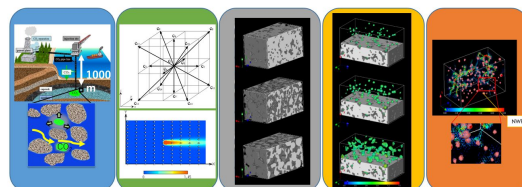


図4 デジタルコアラボラトリー。多孔質物資移動現象を対象として数値解析と空隙スケール計測の融合を試みた。

二酸化炭素(CO₂)地下貯留技術の安全性の評価に必要不可欠となる岩石多孔質内部でのCO₂の移動・溶解・対流などのトラップメカニズムに関する物質移動現象の解明を行った。

地下に毛管力によりトラップされたCO₂は地下水の流動により、徐々に地下水へと溶解する。この物質輸送にかかる質量流束は、一般的に飽和濃度と流体のCO₂溶解濃度の差、比表面積、および、物質伝達係数の積で表されると考えられる。しかしながら、従来の計測手法では、多孔質内部の空隙スケールの可視化が不可能であったために、比表面積と物質伝達係数を分けて評価することができず、その積を現象論的な経験式に基づいて定式化するに限られていた。本研究では、これまでに開発してきた多孔質の空隙スケールでの高解像度可視化技術を駆使することにより、比表面積と物質伝達特性を区別して評価する手法を開発した。比表面積は飽和率により表すことができ、低い飽和率では空隙スケールでのトラップが支配的になり、高い飽和率ではネットワークスケールでのトラップが支配的になり、フラクタル次元のクロスオーバーが見出された。従来の総括物質輸送特性でみると飽和率により物質輸送特性が変化しているように見受けられるが、これはほとんど比表面積の変化により説明することができ、物質輸送特性は飽和率によらず、一定になっていることを見出した。一方で、二重フロントの形成が観察された。数値シミュレーションを併用することにより、多孔質構造によって、物質輸送が死活している領域があることが明らかとなった。

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19件)

- Patmonoaji, A., Suekane T., Investigation of CO₂ dissolution via mass transfer inside a porous medium, *Advances in Water Resources*, 110, pp. 97-106, (2017) DOI: 10.1016/j.advwatres.2017.10.008 査読有
- Suekane, T., Ono, J., Hyodo, A., Nagatsu, Y., Three-dimensional viscous fingering in miscible displacement in porous media, *Physical Review Fluids*, 2, 103902, (2017) DOI: 10.1103/PhysRevFluids.2.103902 査読有
- Wang, L., Nakanishi, Y., Hyodo, A., Suekane, T., Three-dimensional finger structure of natural convection in homogeneous and heterogeneous porous medium, *Energy Procedia*, Vol. 114, pp. 5048-5057 (2017) DOI: 0.1016/j.egypro.2017.03.1658 査読有

- Sakai, S., Nakanishi, Y., Hyodo, A., Wang, L., Suekane, T., Three-dimensional fingering structure associated with gravitationally unstable mixing of miscible fluids in porous media, *Heat Transfer Research*, Vol. 48, Issue 8 pp. 1-17, (2017). DOI: 10.1615/HeatTransRes.2017016840 査読有
- 中西 佑児, 兵藤 陽光, 王 蕾, 末包 哲也, 多孔質の層状不均質性が密度差自然対流に与える影響, 日本機械学会論文集 Vol. 83, No. 847, pp. 16-00381 (2017) doi: 10.1299/transjsme.16-00381 査読有
- Jiang, L., Yu, M., Wu, B., Suekane, T., Li, W., Song, Y., Characterization of dissolution process during brine injection in Berea sandstones: an experiment study, *RSC Adv.*, Vol. 6, pp. 114320-114328, (2016) DOI: 10.1039/C6RA19024 査読有
- Nakanishi, Y., Hyodo, A., Wang, L., Suekane, T., Experimental study of 3D Rayleigh-Taylor convection between miscible fluids in a porous medium, *Advances in Water Resources*, Vol. 97, pp. 224-232, (2016) doi: 10.1016/j.advwatres.2016.09.015 査読有
- Wang, L., Nakanishi, Y., Hyodo, A., Sakai, S., Suekane, T., Three-dimensional structure of natural convection in a porous medium: Effect of the dispersion on finger structure, *Intern. J. Greenhouse Gas Control*, Vol. 53, pp. 274-283, (2016) doi: 10.1016/j.ijggc.2016.08.018 査読有
- Yu Liu, Pengfei Lv, Yao Liu, Lanlan Jiang, Tetsuya Suekane, Yongchen Song, Bohao Wu and Shuyang Liu, CO₂/water two-phase flow in a two-dimensional micromodel of heterogeneous pores and throats, *RSC Advances*, Vol. 6, pp. 73897-73905 (2016) DOI: 10.1039/C6RA10229H 査読有
- Wang, L., Hyodo, A., Sakai, S., Suekane, T., Three-dimensional visualization of natural convection in porous media, *Energy Procedia*, Vol. 86, (2016) pp. 460-468 doi: 10.1016/j.egypro.2016.01.047 査読有
- Suekane, T., Saito, Y., Jiang, L., Non-wetting phase saturation after drainage from the wetting-phase-filled porous medium, *Journal of Fluid Science and Technology*, Vol. 10, No. 2, pp. 1-13 (2015) doi: 10.1299/jfst.2015jfst000x(0.21) 査読有
- Setiawan, A., Suekane, T., Y. Deguchi, K. Kusano, Pore-scale investigation of the effect of connate water to water flooding behavior, *Journal of Fluid Science and Technology*, Vol. 9, No. 2,

pp.1-10, (2014) <http://dx.doi.org/10.1299/jfst.2014jfst0012> 査読有
Mikami, Y., Deguchi, Y., Suekane, T., Effect of heterogeneity of porous media on gas permeation and entrapment, *Journal of Flow Control, Measurement & Visualization*, Vol. 2, pp. 110-119 (2014) <http://dx.doi.org/10.4236/jfcmv.2014.23013> 査読有
Setiawan, A., Suekane, T., Deguchi, Y., Kusano, K., Three-dimensional imaging of pore-scale waterflooding phenomena in water-wet and oil-wet porous medium, *Journal of Flow Control, Measurement & Visualization*, Vol. 2, pp. 25-31 (2014) <http://dx.doi.org/10.4236/jfcmv.2014.22005> 査読有
Setiawan, A., Suekane, T., Effect of wettability on oil trapping process in porous medium, *Theoretical and Applied Mechanics*, Vol. 62, pp. 201-209, (2014) 査読有
末包 哲也, 竹鼻 健祐, 多孔質内におけるCO₂の毛管トラップの数値シミュレーション, *Journal of MMIJ*, Vol. 130, pp. 404-410, (2014) 査読有 https://www.jstage.jst.go.jp/article/journalofmmij/130/7/130_404/_pdf
Suekane, T., Okada, K., Gas injection in a water saturated porous medium: effect of capillarity, buoyancy, and viscosity ratio, *Energy Procedia*, Vol. 37, pp. 5545-5552 (2013) DOI: 10.1016/j.egypro.2013.06.475 査読有
末包 哲也, 岡田 雄大, 水で飽和された多孔質への超臨界CO₂の浸透, 日本機械学会論文集B編, Vol. 79, No. 808, pp. 2592-2596 (2013) in Japanese https://www.jstage.jst.go.jp/article/kikaib/79/808/79_2592/_pdf 査読有
Suekane, T., Nguyen, H.T., Relation between the initial and residual gas saturations of gases trapped by capillarity in natural sandstones, *Journal of Fluid Science and Technology*, Vol. 8, No. 3, pp. 322-336 (2013) DOI: 10.1299/jfst.8.X https://www.jstage.jst.go.jp/article/jfst/8/3/8_322/_pdf 査読有

[学会発表](計14件)

Suekane, T., Nakanishi, Y., Ono, J., Wang, L., Time lapse 3D visualization of fingering associated with Rayleigh-Taylor and Saffman-Taylor instabilities. 14th International Conference on Flow Dynamics, November 1-3, 2017, Sendai, Japan 招待講演
Mushlih, Suekane, T., Micro-imaging of Crossover from Capillary to Viscous Fingerings of Immiscible Two-Phase

Flow in a Porous Medium, 14th International Conference on Flow Dynamics, November 1-3, 2017, Sendai, Japan

Suekane, T., Nakanishi, Y., Wang, L., Three-dimensional Rayleigh-Taylor convection of miscible fluids in a porous medium, 70th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Mechanics, Denver, USA, 19-21, November, 2017.

M. Muharrik, R. Izumi, T. Suekane, Influence of buoyancy, capillary, and viscous force on three-dimensional pore scale fingering structure of immiscible two-phase flow in porous medium, The International Conference on Thermal Science and Technology 2017, The Stones Hotel, Bali, Indonesia, November 17-19, 2017

Wang, L., Nakanishi, Y., Hyodo, A., Suekane, T., Three-dimensional finger structure of natural convection in homogeneous and heterogeneous porous medium, GHGT-13, 14-18, November, 2016, The Swiss Tech Convention Center, Lausanne, EPFL

Suekane, T., Application of micro-tomography to CCS, 2nd International Forum on Advanced Technologies, pp. 145-147, 2016.3.7-8, University of Tokushima, 招待講演

Wang, L., Nakanishi, Y., Hyodo, A., Suekane, T., Three-dimensional finger structure of convective mixing due to density difference in a porous medium, 2nd International Forum on Advanced Technologies, pp. 203-205, 2016.3.7-8, University of Tokushima,

Liu, Y., Nagai, Y., Suekane, T., Pore scale imaging of enhanced oil recovery by WAG including nanofluid application, 2nd International Forum on Advanced Technologies, pp. 93-95, 2016.3.7-8, University of Tokushima,

Patmonoaji, A., Ando, S., Suekane, T., Experimental Investigation of CO₂ Dissolution Rate in Plastic Beads Porous Media Model under Different Water Injection Direction by X-ray CT Microtomography, 2nd International Forum on Advanced Technologies, pp. 75-77, 2016.3.7-8, University of Tokushima,

Suekane, T., Study on trapping mechanisms in CCS by X-ray microtomography, I2CNER Workshop, 2016.2.4, University of Kyushu, 招待講演

Nagai, Y., Suekane, T., Three phase interaction among gas, water and oil in

three-dimensional porous media by X-ray micro-tomography, International Workshop on Heat Transfer Advances for Energy Conservation and Pollution Control, 16-19, October, 2015, Taipei, Taiwan

Sakai, S., Hyodo, A., Wang, L., Suekane, T., Three-dimensional fingering associated with Rayleigh-Taylor instability in porous media, International Workshop on Heat Transfer Advances for Energy Conservation and Pollution Control, 16-19, October, 2015, Taipei, Taiwan

Wang, L., Hyodo, A., Sakai, S., Suekane, T., Three-dimensional visualization of natural convection in porous media, 8th Trondheim Conference on CO₂ Capture, Transport and Storage, Trondheim, Norway, 16-18 June, 2015

Suekane, T., Sakai, S., Three-dimensional visualization of natural convection of miscible fluids due to the density difference in a packed bed, 8th International Conference on Computational and Experimental Methods in Multiphase and Complex Flow, 20-22 April, 2015, València, Spain (2015) 招待講演

6 . 研究組織

(1)研究代表者

末包 哲也 (SUEKANE, Tetsuya)

東京工業大学・工学院・教授

研究者番号：30262314