

## 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 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360442

研究課題名（和文）CO<sub>2</sub> 地中貯留のための CO<sub>2</sub> 反応性グラウトによる人工バリアー形成法の構築研究課題名（英文）Development of the method to remedy leakage from geological CO<sub>2</sub> reservoir using CO<sub>2</sub> reactive grout

研究代表者

伊藤 高敏（ITO TAKATOSHI）

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：00184664

研究成果の概要（和文）：CO<sub>2</sub> 地中貯留の上部を覆うキャップロックの欠陥を通して漏洩が起きた場合に、その漏洩を人工的に修復するための方法として原位置反応法を提案した。これは、漏洩箇所の近くにある観測井、あるいは新たに掘削した坑井を通じて注入した適当な溶液と漏洩した CO<sub>2</sub> が混合して生じる反応生成物によって漏洩箇所を充填するものである。そこで、同法の基本原理を室内実験で確認すると共に、フィールドに適用した際の挙動を数値シミュレーションで予測し、その有効性を検証した。

研究成果の概要（英文）： In order to remedy CO<sub>2</sub> leakage through pre-existing and/or induced fractures from storage reservoirs, we studied a concept to use an aqueous solution. The solution will have a sufficiently-low viscosity for passing through even small aperture, and it will not impact formation permeability as long as the solution is left as it is. When the solution encounters dissolved CO<sub>2</sub>, precipitation will occur due to chemical reaction. As a result, the permeability will be reduced by filling the pores and fractures in the rocks with the precipitates. We demonstrated first this idea through laboratory experiments simulating subsurface condition at 1000 m deep, i.e. 10 MPa and 40 deg. C. The results show that the present method led to a 99 % permeability reduction in a glass-bead artificial rock even its initially-high permeability of few darcy. Such reduction of permeability was reproduced successfully by the non-isothermal reactive geochemical transport program TOUGHREACT. Based upon these success, the present method was applied by numerical modeling to a 2-D caprock-aquifer system under field physical and chemical conditions. The results show that the precipitates were produced and they filled up pores around outlet of the leakage path so sufficiently that the CO<sub>2</sub> migration was blocked, and the condition was confirmed stable over a long time.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	5,200,000	1,560,000	6,760,000
2010 年度	5,100,000	1,530,000	6,630,000
2011 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
総計	11,500,000	3,450,000	1,4950,000

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：廃棄物地下保存・処分

### 1. 研究開始当初の背景

地球温暖化による被害を抑制するため、2050年までにCO<sub>2</sub>排出量を現在のレベルから半減させることをが求められている。その具体策としてCO<sub>2</sub>地中貯留が大きく期待されている。これは火力発電所等の排出ガスから分離回収したCO<sub>2</sub>を、深度800~3000mにある帯水層に超臨界状態で注入して水に溶解・固定化するものである。ただし、そのような深度になるとCO<sub>2</sub>が圧力で高密度化するものの地下水より依然として3~4割軽く、溶解以前にCO<sub>2</sub>が浮力で上昇してしまう。これを防ぐため、キャップロックと呼ばれる天然のシール層構造の下にCO<sub>2</sub>を注入する。そのキャップロックは、低浸透性で十分な厚さ(数十m)と広さ(数km<sup>2</sup>)を持つ連続体でなければならない。しかし、キャップロックを縦断する活断層が存在、あるいは、地震等によって新たな断層が発生し、それを通してCO<sub>2</sub>の漏洩が起こる可能性がある。このようなことから、CO<sub>2</sub>漏洩を検出し、それを修復するための新たな技術開発が必要となっている。

### 2. 研究の目的

貯留層からのCO<sub>2</sub>漏洩を修復する直接的な手段は、坑井を通してグラウト材(充填材)を漏洩箇所へ注入することである。しかしながら、建築・土木等の分野で用いられる従来型のグラウトでは、上記の目的を達成することができない。これは、地質構造と漏洩箇所の検出精度から考えて、修復対象領域の広がり10<sup>4</sup>m<sup>2</sup>程度になると予想されるのに対し、従来型のグラウトは粘性が大きいため、そのように広い範囲に注入することが不可能なためである。この問題は、漏洩箇所には当然存在するはずのCO<sub>2</sub>水溶液を利用することで解決できる可能性がある。すなわち、グラウト単体では粘性が小さくて拡散性が高いが、CO<sub>2</sub>水溶液と混合すると化学反応によって沈殿物を生じ、それが漏洩箇所の隙間を充填して浸透性を低下させるというものである。このような特性のグラウトを反応性グラウトと呼び、それをを用いた漏洩修復法を原位置反応法と呼ぶ。本研究では、同概念の実現性を室内実験と数値解析によって検討することを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究で提案する原位置反応法は図3-1のようなものである。初めに反応性グラウトとして用いることのできる物質を検討した。その結果、珪酸ソーダ水溶液が適当と判断された。同溶液がCO<sub>2</sub>水溶液と混合すると、水ガラス(珪酸ソーダ)中の珪酸H<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>

が炭酸H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>と反応してアモルファスシリカ(SiO<sub>2</sub>(am))が析出すると考えられる。次に室内実験を実施し、珪酸ソーダ水溶液による原位置反応法を適用することで、模擬地層の浸透性が低下する様子を調べた。そこで、压力容器を満たしたφ100μmのガラスビーズの集合体を漏洩箇所の地層と見なし、それを深度1000mに相当する温度(40℃)および間隙水圧(10MPa)の状態にした上で、その内部に珪酸ソーダ水溶液とCO<sub>2</sub>を注入して混合させた。また、その前後において模擬岩石に差圧をかけて水を流し、そのときの差圧と水の流量から、模擬岩石の浸透性を評価した(図3-2)。

一方、実際のCO<sub>2</sub>地中貯留では1km規模の空間と百年程度の時間で起こる現象を対象となるのに対して、室内実験では数十cm規模の空間と1週間程度の時間で起こる現象を対象とせざるを得ず、両者には大きな差がある。また、原位置反応法の妥当性を調べるには、実規模で起こる現象を予測して評価する必要がある。そこで、室内実験の結果に基づいて原位置反応過程をモデル化し、実規模で原位置反応法を適用した際の現象を数値シミュレーションで予測した。この解析にはTOUGHREACTを用い、その開発者であるTianfu XU(米国ローレン・スパークレイ国立研究所)の協力を得た。このコードによる

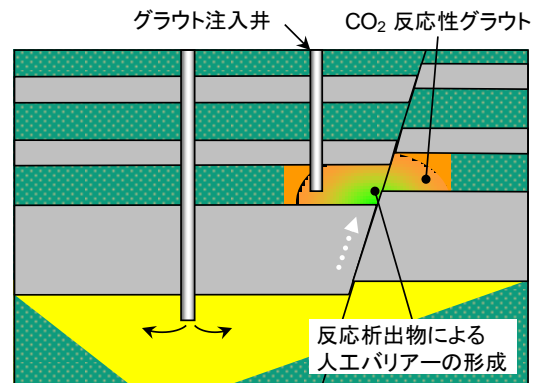


図3-1 原位置反応法の基本概念

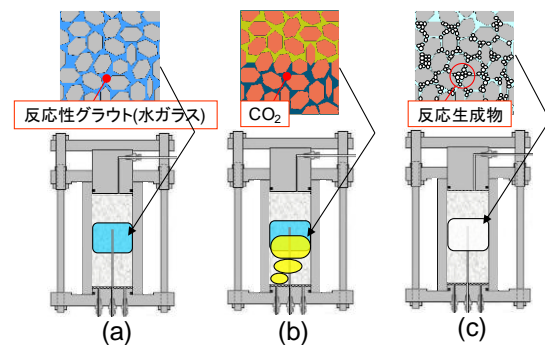


図3-2 室内実験方法

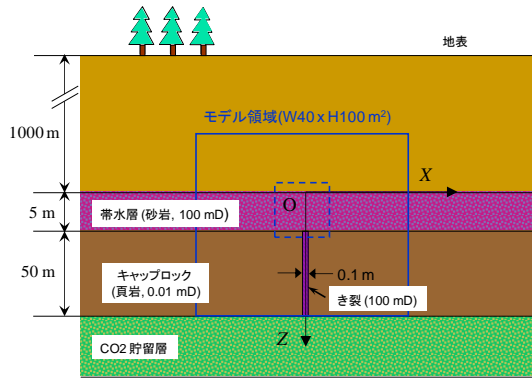


図 3-3 数値シミュレーションモデル

と、多孔質・き裂性岩体を対象とし、その中で起こる、気・液・固相状態にある複数の化学種が関わる鉱物の溶解・析出と、それに伴う間隙率と浸透率の変化を、反応速度を考慮して解析することが可能である。仮定したモデルは2次元である(図3-3)。厚さ50mのキャップロック(浸透率0.001 mD)を挟んでCO<sub>2</sub>を貯留する下部帯水層と、反応性グラウトで満たされた厚さ5mの上部帯水層(浸透率100 mD)から構成されている。この状態で、キャップロックを鉛直に貫通する幅0.1mのき裂(浸透率100 mD)を通してCO<sub>2</sub>が上部帯水層に漏洩した際に起こる現象を評価した。

#### 4. 研究成果

室内実験の結果、濃度が薄く、粘性が水の2倍程度と小さい反応性グラウトを用いた場合であっても、初期状態には5400 mDであった浸透率が、珪酸ソーダ水溶液とCO<sub>2</sub>の圧入後には30 mD程度となり、1/100以下まで低下することがわかった(図4-1)。

実規模の数値シミュレーションにおいては、CO<sub>2</sub>が漏洩している状態で、漏洩経路の上端近傍に反応性グラウトを注入するケースAとCO<sub>2</sub>が漏洩する前に上部帯水層に予め反応性グラウトを注入するケースBの2通りを想定した。ケースAにおいてグラウト注入から10年経過した後の浸透率分布を求めた結果が図4-2aである。これより、グラウト注入箇所の浸透率がキャップロックと同程度まで低下していることがわかる。また、注入点の浸透率は大きいままであり、反応析出物によってグラウトの注入が阻害されないことがわかる。同時点におけるアモルファスシリカSiO<sub>2</sub>(am)の分布を図4-2bに示す。この分布と浸透率の分布は良く対応しており、アモルファスシリカの析出によって浸透率が低下していることがわかる。一方、ケースBにおいてCO<sub>2</sub>の漏洩開始から同じく10年経過した後の浸透率分布を求めた結果が図4-3である。これより、上部帯水層内の浸

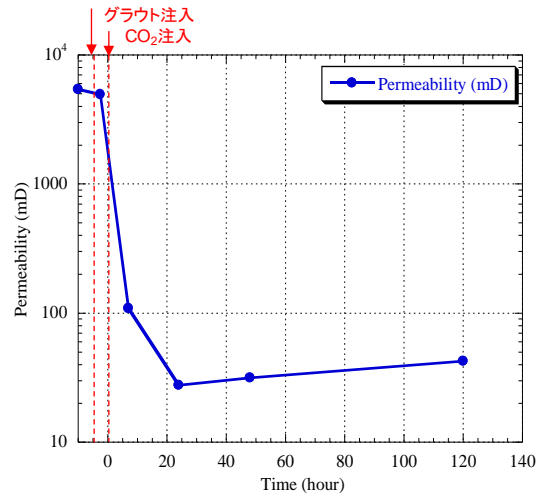
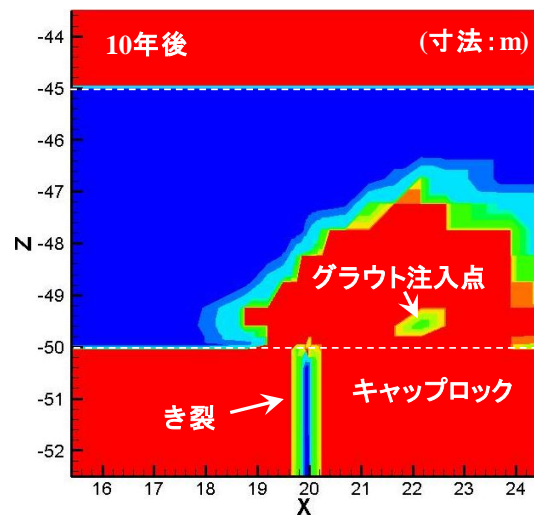
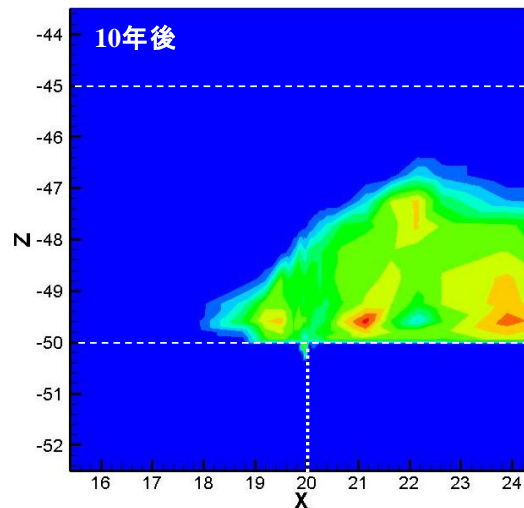


図 4-1 室内実験結果

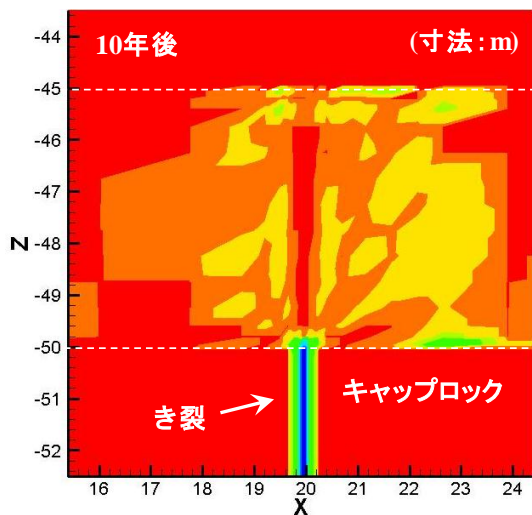


(a)

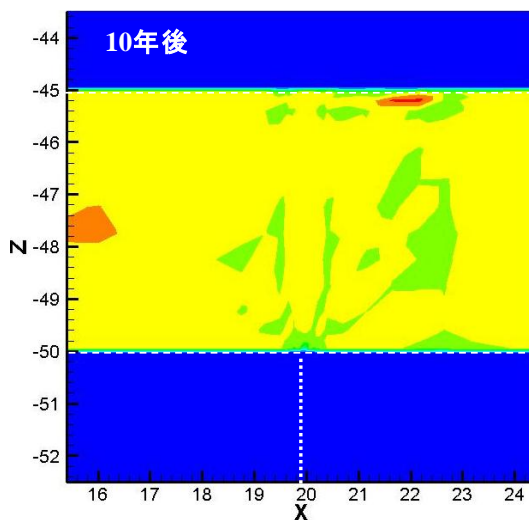


(b)

図 4-2 シミュレーション結果(ケースA)、(a)浸透率および(b)析出したアモルファスシリカの分布



(a)



(b)

図 4-3 シミュレーション結果 (ケース B), (a)浸透率および(b)析出したアモルファスシリカの分布

透率が、き裂上部を除けばキャップロックと同程度まで低下していることがわかる。以上の結果より、本研究で提案した原位置反応法による漏洩修復法が、実現する可能性の高い方法であることが確認された。この結果を踏まえ、今後は実規模実験を行って原位置反応法の妥当性を検証することが望まれる。

#### 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)

[学会発表] (計 4 件)

- ① 谷内雄紀, 田中秀宜, 伊藤高敏, Xu, T., CO<sub>2</sub> 貯留層からの漏洩修復法とそのケーススタディー, 資源素材学会秋季大会企画発表・一般発表 (B) (C) 講演資

料, pp.163-164, 堺, 2011.9.28.

- ② 田中秀宜, 伊藤高敏, 関根孝太郎, Xu, T., CO<sub>2</sub> 地中貯留層からの原位置反応法による漏洩修復と数値シミュレーションによる検討, 石油技術協会春季講演会要旨集, p.143, 東京, 2010.6.9.
- ③ T. Ito, Proposed Concept of In-situ Reaction Barrier to Remedy Leakage from Reservoirs of Geological CO<sub>2</sub> Storage, *Proc. of the 2nd Int. Symp. of Experiment-Integrated Comp. Chem. Multi-scale Fluids*, pp.55-56, Sendai, 2010.2.24. (招待講演)
- ④ 田中秀宜, 櫻井雅徳, 関根孝太郎, 伊藤高敏, CO<sub>2</sub> 地中貯留層からの漏洩修復法の検討, 日本地球惑星科学連合大会予稿集, R224-P025, 千葉, 2009.5.18.

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

伊藤 高敏 (ITO TAKATOSHI)

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：00184664

##### (2) 研究分担者

該当なし

##### (3) 連携研究者

関根 孝太郎 (SEKINE KOTARO)

石油天然ガス・金属鉱物資源機構・技術センター・研究員

研究者番号：70361194

佐藤 晃 (SATO AKIRA)

熊本大学・自然科学研究科・准教授

研究者番号：40305008

當舎 利行 (TOSHA TOSHIYUKI)

産業技術総合研究所・地圏資源環境研究部門・主幹研究員

研究者番号：10357551