

令和元年6月8日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04411

研究課題名(和文) 液-気-化学連成場における地盤内のファインバブル挙動の解明

研究課題名(英文) Study of fine bubble behavior in ground in liquid-air-chemical coupled field

研究代表者

竹村 貴人 (TAKEMURA, Takato)

日本大学・文理学部・教授

研究者番号：30359591

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ファインバブルの理化学性把握、気・液・化学連成場における地盤内のファインバブル挙動解析、現場スケールでのファインバブル移動特性把握を行なった。これらの結果を踏まえ、地盤内におけるCO<sub>2</sub>態/CO<sub>2</sub>態ファインバブルの移動領域・環境影響範囲の推定、ファインバブルを用いた効率的なCO<sub>2</sub>地中中和処理工法の提案を行なった。その結果、通水溶液のpH条件がファインバブルの移動特性に与える影響、異なるpH条件でのファインバブルの存在寿命について実験により明らかにした。また、原位置試験より、CO<sub>2</sub>地中中和処理のための滞水層中のファインバブルの挙動についての評価を行なった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、未だ不明な点が多く残されている気泡径がおおよそ数十nm以上数十μm以下の微細気泡であるファインバブルの地盤内での挙動についての理化学特性の評価を行なった。粘土粒子やコロイド粒子の混ざっている地下水中のファインバブルの密度と気泡径を共振式質量計により測定することに成功し、この測定を用い、ファインバブルの地盤材料への吸着特性などを明らかにした。また、地球温暖化の対策としての二酸化炭素削減法の一つとなり得るCO<sub>2</sub>態ファインバブルによる地中中和処理工法の検証を行った。本工法は従来の超臨界処理に比べ、小規模ながらより低コストで行うことができるものである。

研究成果の概要(英文)：In this study, we investigated the physicochemical properties of fine bubbles, and analyzed the behavior of fine bubbles in the ground under a gas - liquid - chemical coupled field. In addition, in-situ test was carried out to understand the behavior of fine bubble. Based on these results, we estimated the movement area and environmental impact of CO<sub>2</sub> / CO<sub>2</sub> fine bubbles in the ground, and proposed an efficient CO<sub>2</sub> underground neutralization treatment method using fine bubbles. As a result, the influence of the pH condition of the injected solution on the migration characteristics of the fine bubble and the existence lifetime of the fine bubble under different pH conditions were clarified by experiments. Moreover, we evaluated the behavior of fine bubbles in the aquifer for CO<sub>2</sub> underground neutralization treatment from the in-situ test.

研究分野：地盤工学・応用地質学

キーワード：ファインバブル CO<sub>2</sub>地中中和処理

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、ファインバブルの地盤環境工学分野における利用が注目されている。ファインバブルは気泡径がおおよそ数十 nm 以上数十  $\mu\text{m}$  以下の微細気泡で、比表面積が大きく、液体中の滞留時間も長くなるため分散性に優れ、気液界面での高い物理・化学的吸着効果を有する。これらファインバブルの有する理化学性を活用した土壌浄化や  $\text{CO}_2$  地中中和処理が検討されている。例えば、石炭系炭化水素(油分)や有機塩素化合物等の有害物質による土壌汚染サイトでは、ファインバブルを含む気泡水(ファインバブル水)を注入することで、ファインバブルへの汚染物質の吸着作用やファインバブルによる汚染物質成分の剥離効果を利用した地盤中の汚染物質・浄化が可能である。また、ファインバブルを  $\text{O}_2$  ガスで発生させた場合、 $\text{O}_2$  態 FB 水は高い溶存酸素濃度を有することから、地盤環境を好氣的環境に促し、汚染物質を分解する好気性細菌を活性化させる。その際にもファインバブルの高い移動性はこれら原位置バイオレメディエーションの効率性上昇に大きく貢献する。また現在、 $\text{CO}_2$  地中中和処理法として、 $\text{CO}_2$  態ファインバブルを Ca や Mg の豊富な地盤(石灰質岩盤等)に注入し地盤内で中和処理することが検討されている。 $\text{CO}_2$  態ファインバブル水では、 $\text{CO}_2$  が飽和溶解量より多く存在できるため、より多くの  $\text{CO}_2$  を岩盤・地盤へ送り込む事ができる。また、地盤中での pH に関する地下水環境基準をクリアできれば、100m 以浅でも実施可能な技術であり、超臨界  $\text{CO}_2$  による地中貯留工法(CCS)より、コスト・安全面・環境影響の点で優れている工法である。

### 2. 研究の目的

気泡態ファインバブルの液相における溶解・平衡反応と間隙水中イオン類との化学反応、気泡態および溶存態ファインバブルの物質移動としての移流・分散現象に焦点を当て、気・液・化学連成場におけるファインバブルの地盤内移動モデル構築することを目的とする。ファインバブルの地盤内移動を解明するためには、ファインバブルの合体成長・消失、固相や汚染物質への物質分配(分配係数)、液相における物質移動を規定するパラメータを正しく評価する必要がある。本研究課題では、以下の項目について検討を行った。

- ・ファインバブルの理化学性把握および固相・汚染物質への物質分配機構の解明
- ・気・液・化学連成場における地盤内のファインバブル挙動解析ツールの構築
- ・現場スケールでのファインバブル移動特性把握および解析ツールを用いた環境影響評価

本研究の最終目標は、地盤内におけるファインバブル移動モデルを構築し、ファインバブルの運命予測を行い、土壌汚染サイトまたは Ca に富む地盤内における  $\text{O}_2$  態/ $\text{CO}_2$  態ファインバブルの移動領域・環境影響範囲の推定や、ファインバブルを用いた効率的な浄化工法および  $\text{CO}_2$  地中中和処理工法を提案することにある。

### 3. 研究の方法

$\text{CO}_2$  地中中和処理を想定した多孔質岩盤試料として、琉球石灰岩(沖縄)、来待砂岩(鳥取)、凝灰岩(大谷石)、上総層(東京)、花崗岩(茨城)を設定し、試料として用い、 $\text{CO}_2$  態ファインバブル水による溶解試験を行った。ガラスビーズを充填したカラムにファインバブル水を注入する実験を行い、通水溶液の pH 条件がファインバブルの移動特性に与える影響を調べ、ファインバブルの捕捉メカニズムを DLVO 理論によって検討した。ここで、カラム試験は加圧溶解法により作成した酸素ファインバブル水を異なる pH(5, 8, 11)に調整したファインバブル水を注入することにより行った。また、酸素、 $\text{CO}_2$  態ファインバ

ブル水を用いたことなる pH 環境下での存在寿命の測定を行った(いずれも飽和状態)。ここで、本研究では、ファインバブルの存在密度を従来のようなレーザー粒度計でなく、固体と気泡を選り分けて測定できる共振式質量計により測定を行った。この測定法による地盤内の気泡測定は初めての試みであり、従来のレーザーによる測定では確定できなかった気泡のみの密度と粒径分布を測定することができた(図1)。また、気・液・化学連成場における二酸化炭素のファインバブルの挙動解析を二重境界膜説(Double film theory)と移流拡散解析により行い、地中での二酸化炭素の移動予測を行った。また、二酸化炭素のファインバブル水を異なる流量や気泡密度条件で注入し、pH、溶存酸素(DO)濃度、イオン類濃度などの地下水質変化を観測井による採水を通してモニタリングを行った。原位置試験は、深さ 12m の 2 本の井戸(1m の間隔)を用いて行った。2 本の井戸共にスクリーンが層厚約 2m の礫層に設置されている。この礫層は上下ともに粘土層に止水されており独立した滞水層となっている。この滞水層に注入用井戸から空気およ

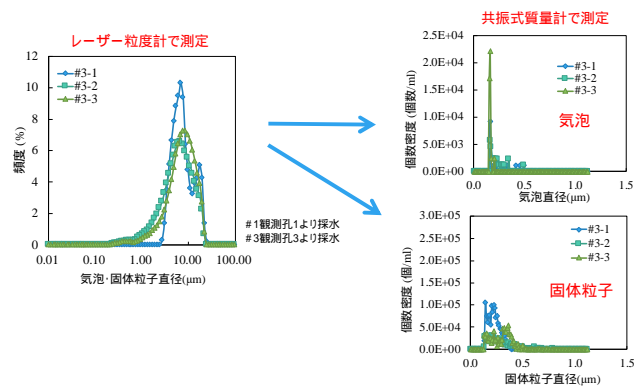


図1 共振式質量計での地下水中の気泡径分布

び二酸化炭素のファインバブルを注入し 1m 離れた井戸から定期的にサンプリングを行い、共振式質量計による気泡密度の測定と水質の測定を行った。また、同時に注入したファインバブル水の挙動を捉えるために、比抵抗トモグラフィーによる物理探査を行った。

#### 4. 研究成果

5 種類の岩石を用いた、CO<sub>2</sub> 態ファインバブル水による溶解試験の結果、炭酸カルシウムの含有量のみならず Mg の含有量も溶解速度に強く影響を与えていることを確認した。その結果、CO<sub>2</sub> 地中中和処理の対象地盤が石灰岩層だけでなく、塩基質の岩盤も対象となり得ることを示唆している。

カラム実験から、微細気泡の移動特性は pH 条件に大きく影響を受け、低 pH ほどファインバブルのガラスビーズへの捕捉率は増加した。相互作用エネルギーの計算から、pH5 から 11 条件では沈着のための高いエネルギー障壁が存在することが分かった。しかし、ガラスビーズ表面の凸凹を考慮することで、このエネルギー障壁が大きく減少することがわかった。図 2 に二酸化炭素と酸素のファインバブルの存在割合の変化を示した。

酸素に関しては、pH の影響を強く受けており、pH=11 では、消滅せずに残存しており、pH=6 では数日での存在割合が半減している。一方で、二酸化炭素のファインバブルでは、pH によらず数日で半減している。気泡密度の測定に使用したサンプルに対して 電位の測定を行った結果、

CO<sub>2</sub>: -14.5mV (pH=4.4), -21.7mV (pH=5.2)

O<sub>2</sub>: -32.4mV (pH=5.8), -58.4mV (pH=10.8)

であった。電位はバブルの分散の安定性の指標なり絶対値が大きいほど安定的である。このことから、CO<sub>2</sub> 態ファインバブルは動きが活発になることで衝突回数が増加しバブル同士がく

つつくことでファインバブルが消滅している可能性が考えられる。二酸化炭素で飽和していない水に CO<sub>2</sub> 態ファインバブルを注入した際を考えると、その溶解速度は気液界面の拡散速度がパラメータとなり、気泡密度に依存する。閉じた系であれば、CO<sub>2</sub> 態ファインバブルにより水中の H<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 濃度は数時間で飽和に達する。この結果は、二酸化炭素の地下貯留を考える際に、どの程度のファインバブルの密度で注入すべきかを検討する際の指標となり得る。本研究では、地下水利用の及ばない深部において、ボーリング孔を通じて、ファインバブルによって直接 CO<sub>2</sub> を溶解させた溶解水を注入し、岩盤層を中和槽とする CO<sub>2</sub> 地中中和処理の可能性の検討を行った。本工法は、大深度に CO<sub>2</sub> を圧入する超臨界処理とは異なり比較的浅い深度で中和処理を行うため、大規模な地上設備を必要とせず、中小規模排出源近傍で実施することを可能とする。図 3 に原位置での注入試験の前後での比抵抗値の変化を示した。深度 12m に注入したファインバブル水は帯水層を移動し側方に広がっていることが確認された。また、1m 離れた井戸から採取した水にはファインバブルが残っており、礫層中においてもファインバブルが移動している可能性を示した。しかしながら、比抵抗値とファインバブル水の相関に関して、室内試験での比較を行っていないため、今後、土槽を用いた実験室規模での注入試験中の比抵抗値の計測を行う必要がある。また、二酸化炭素の地下への注入試験に関して、オーストラリアのビクトリア州で行われている原位置試験に参加し、地下深部での断層沿いの二酸化炭素含有水の移動に関する実験を行ない、二酸化炭素の地表面への漏洩リスクの可能性の検討を行った。

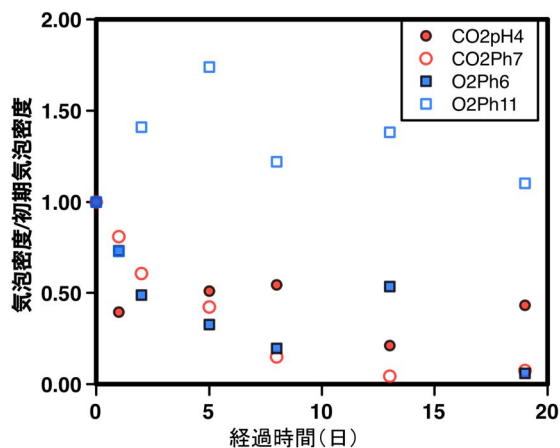


図 2 二酸化炭素と酸素ファインバブルの存在寿命

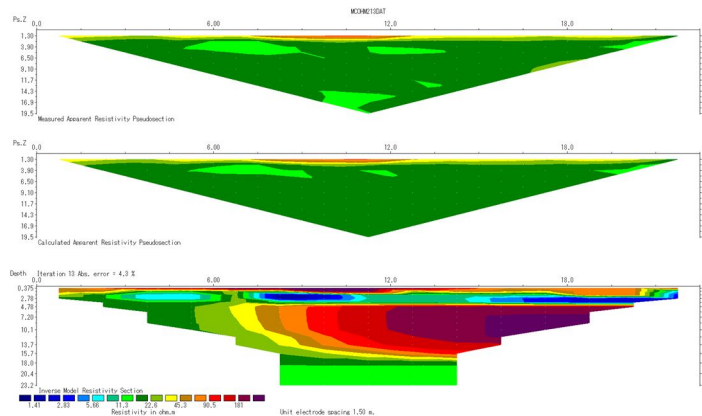


図 3 ファインバブル水注入前(上2つ)と注入後(下)の比抵抗トモグラフィー

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計1件)

Hamamoto, S., Takemura, T., Suzuki, K., Nishimura, T., Effects of pH on Nano-Bubble Stability and Transport in Saturated Porous Media,査読有り, Journal of Contaminant Hydrology, Vol. 208, 2018, pp.61-67  
DOI 10.1016/j.jconhyd.2017.12.001

[学会発表](計5件)

Takemura, T., Hamamoto, S., Suzuki, K., Okuzawa, K., Migration of carbon dioxide included micro-nano bubble water in porous media and its monitoring, AGU Fall Meeting 2017, New Orleans, USA, 2017

Takemura, T., Hamamoto, S., Suzuki, K., Okusawa, K., Lifetime of Carbon Dioxide Included Micro-nano Bubble in Shallow Aquifer and Chemical Reaction with CO<sub>2</sub> and Sediments, AOGS 2017, Singapore, 2017

濱本昌一郎・竹村貴人・鈴木健一郎・二瓶直登・西村拓, 微細気泡水の化学的特性が多孔質体中の微細気泡挙動に与える研究, 第52地盤工学研究発表会, 名古屋, 2017

Takemura, T., Hamamoto, S., Sato, M., Injection of micro-nano bubble water into unconfined aquifer and monitoring its behavior, AGU Fall meeting 2016, San Francisco, USA, 2016

竹村貴人・鈴木健一郎・濱本昌一郎・長田昌彦, 二酸化炭素ファインバブル水と岩石の中和反応に関する実験的研究, 応用地質研究発表会, 仙台, 2016 .

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：濱本 昌一郎

ローマ字氏名：HAMAMOTO, Shoichiro

所属研究機関名：東京大学

部局名：大学院農学生命科学研究科(農学部)

職名：准教授

研究者番号(8桁): 30581946

研究分担者氏名：斎藤 広隆

ローマ字氏名：SAITO, Hirotaka

所属研究機関名：東京農工大学

部局名：(連合)農学研究科(研究院)

職名：教授

研究者番号(8桁): 70447514

### (2)研究協力者

研究協力者氏名：鈴木 健一郎(株式会社大林組)

ローマ字氏名：SUZUKI, Kenichiro

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。