

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 4 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360372

研究課題名(和文)CO₂地中貯留リスク評価のための花崗岩層のガス移流拡散フィールド試験研究課題名(英文)Field Tests to Measure CO₂ Gas Dispersion through Granite Layer for Risk Evaluation on CO₂ Geological Storage

研究代表者

佐々木 久郎(SASAKI, KYURO)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60178639

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文)：地球温暖化防止の上で重要視されているCO₂回収・地中貯留(CCS)に関わるCO₂漏洩モニタリングについてフィールド試験を実施し、CO₂拡散挙動を把握するための地表近くのガスモニタリング手法とその装置の開発を行った。地表の土壌CO₂のバックグラウンド濃度は気温変動や降雨により影響を受けるため、地表面の土壌CO₂に基づく漏洩検知は季節変動を考慮した判断が必要とされる。一方、精油所で回収されるCO₂にはH₂が不純物ガスとして含まれるため、H₂とCO₂混合ガスを用いたフィールド試験を実施し、H₂ガスがCO₂に先立って地表において検出される結果を明らかにし、漏洩検出モニタリング装置の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：CO₂ Capture and Geological Storage (CCS) is expected to be one of effective methods to reduce CO₂ gas emission to prevent global warming. We have carried out the various experiments at the tests field with 5 test wells with length of 100m, 20m and 0.4m. It has been observed that the natural soil CO₂ gas concentration at the surface is fluctuating with seasoning temperature and rainfall. Thus, it is required to consider the leaked CO₂ gas from the deep geological storage based on natural soil CO₂ fluctuation. However, during CO₂ capture process in oil refineries, H₂ gas is included in the captured CO₂ as Impurity gas. Thus, we have carried the field experiments about the CO₂ leakage using 1% H₂ gas as the tracer. It has been cleared that H₂ can be detected before CO₂ leakage flow from the storage moving to the ground surface. Furthermore we have developed the prototype of monitoring post to detect the leakage gas at the ground surface with researches on total CCS and CCUS system.

研究分野：地球資源システム工学

キーワード：廃棄物地下保存・処分 二酸化炭素 CO₂地中貯留 CCS 漏洩モニタリング フィールド試験 水素坑井

1. 研究開始当初の背景

(1)地球温暖化は二酸化炭素をはじめとする人類起源の温室効果ガスの排出が大きく影響している。地球温暖化による地球規模での平均気温の上昇は、それに伴う海水面の上昇ならびに降水分布の変化などを引き起こしていると推測されている。すでに気象の変化に伴う異変が地球全体で起こっており、これからは生態系や生活環境に影響を及ぼすであろうと危惧されており、対策が急務とされ、2015年末にCO₂削減に関わる新たな世界の枠組みの合意が期待されている。IPCC(2013)のレポートに基づいて著者らが作成した地球規模での炭素循環の概念を図1に示す。

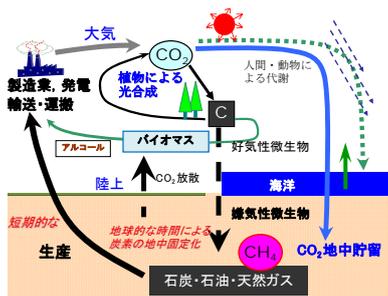


図1. 地球における炭素循環の模式図

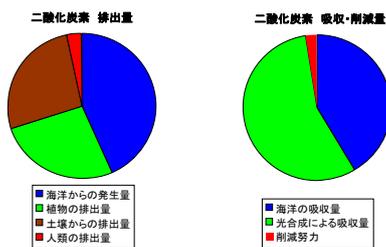


図2. 地球上の大気に対するCO₂排出量と吸収量(固定量)

(2) 大気、海洋、地中(地下)におけるCO₂ガスのおおまかな量的バランスを図2に示す。とくに、排出量と吸収・削減量として大きな割合を持つものが植物関連であり、陸域の土壌から大気中に放散されているCO₂が年2000億ton強と見積もられていることが注目される。地球上の全土壌中には、大気中のCO₂の約2倍あるいは陸上の植物バイオマスの約3倍に相当する約1兆5000億tonの炭素が存在するとされており、土壌から大気へのCO₂ガス放散量も地球の炭素循環を考える上で重要となっている。現在、人類に関連するCO₂排出量は約年320億tonであることから、地球の炭素循環を数年の短期間に変化させるものではないが、それらの削減を図る世界的な合意と技術的方策の開発が不可欠となっている。

(3) 経済成長を阻害することなく大気中への温室効果ガスの放散を削減する方策として、CO₂分離・回収と固定(隔離)あるいは有効利用に関する技術開発が進められている。とくに、CO₂回収・地中貯留(Carbon Dioxide

Capture and Storage, CCS)は有効な方策として実証試験や商業事業が推進されている。ただし、CCSを行う上で、CO₂分離・回収費用に対する国あるいは事業者の負担が実用化・事業化の障壁となっており、2020年頃までにCO₂回収費用を2,000円/ton CO₂まで低減することが政策目標となっている。

2. 研究の目的

(1) CCSはCO₂の排出削減効果が大きく、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つとして世界的に期待されており、欧米諸国を中心に、商業レベル、研究レベルの具体的なプロジェクトが進行している。このように、CCSは緊急の技術開発課題であるが、安全性の確保、環境への影響評価などが解決すべき課題を有している。海底下への貯留であっても居住地域に近いプロジェクトにおいては、CO₂モニタリング技術は地域の安全・安心を確保する上で重要な必須項目の一つであり、長期に信頼性の高い手法が必要とされている。

(2) CO₂地中貯留において一般に想定されている地下約1000~3000mの貯留層から地表までのCO₂の拡散挙動を整理すると、貯留層も含めて地下水が飽和している地下深部領域における移流挙動と、地下水が飽和帯から不飽和帯に変化する地下数百m以浅の領域における拡散挙動の2つに大きく分けることができる。このうち地下深部領域におけるCO₂の拡散挙動については、同領域を計算の対象としている油層シミュレータなどを用いて予測が可能である。一方、地表から数百m以浅の領域については、地下水の飽和帯から不飽和帯に変化する領域であるため、CO₂の拡散挙動が深部の飽和帯におけるものとは異なると予測され、一般的な油層シミュレータは適用困難である。そのため、この領域におけるCO₂の拡散挙動を予測可能な地層モデルを新たに構築することが必要である。同領域におけるCO₂の拡散挙動は、貯留層から拡散してきたCO₂が最終的に地表へ漏洩する挙動に影響を及ぼすため重要であるが、研究例はほとんど見当たらない。

(3) CO₂の地中貯留においては、貯留したCO₂の地表への漏洩が懸念されており、貯留層内のみならず地表へのCO₂の拡散挙動を考慮したCO₂地中貯留シミュレータの開発が求められている。そのためには、地下から地表におけるCO₂の拡散挙動を明らかにする必要がある。

3. 研究の方法

(1) フィールド試験の実施条件

当初計画にあげた主要目的に沿う試験フィールドでの坑井およびモニタリングパイプ群を利用したトレーサの地表へのガス移流・拡散試験によってガス漏洩に関わる岩盤層の特性把握に関わる試験を実施した。とくに、地下水の飽和帯から不飽和帯に変化する領域におけるCO₂の拡散挙動をフィールド

スケールで把握し、この領域の地層モデルを含めた貯留層モデルを構築して、CO₂の貯留から漏洩までを予測可能な数値シミュレータの開発を進めている。本研究におけるCO₂フィールド試験の概要を図3に示す。深度100mの2本の坑井、モニタリング深度20mの3本の坑井、深度20cmの93本の土壌ガスモニタリングパイプから構成される(図4)。また、掘削コアの特性(地層、岩石、口径、フラクチャー、温度分布、地下水位、両坑井の導水性、水の化学分析)についてのデータが蓄積されている。また、ガス圧入試験用の100m昇降ウィンチ、圧入坑井用の流体封じ込め用の坑井パッカー、100m用の圧入ガス挿入ラインなどのフィールド試験装置およびシステムを構築し、CO₂圧入試験およびモニタリング井内と地表でのガス濃度測定に関わる研究実施環境を整備した(Susanto et al., 2013)。なお、平成24年度に、坑井の一本において、地表下38m位置の裸坑部に不測の坑壁崩壊が認められたため、当初計画になかった坑井の再掘削とその崩壊部分をカバーするケーシング管の設置などを行った。

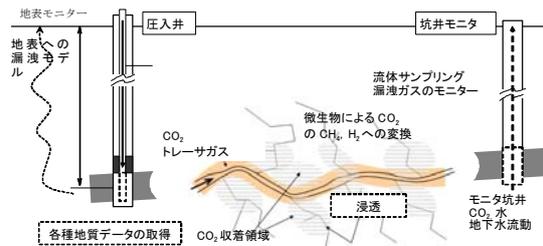


図3 本研究におけるフィールド試験の概念図

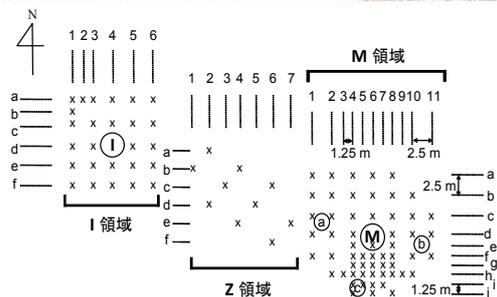


図4 CO₂試験フィールドにおける坑井配置状況[下図:(○)およびモニタリングポイント(x)配置]

(2)試験坑井およびガス濃度モニタリング
九州大学伊都キャンパス内に深さの異なる5本の坑井を掘削し、地表におけるCO₂濃度を測定するためのモニタリングポイントを93本設置した(図6参照)。各坑井およびモニタリングポイントの配置図を図4に示し、各坑井およびサンプリングポイントの仕様を図5に示す。各坑井の周辺には地表への

拡散ガス濃度をモニタリングするために、合計93本の内径24mm、長さ400mmの鉄パイプを地中200mmの深さに垂直に埋め込み、その先端をラバーキャップで密封した(図6)。

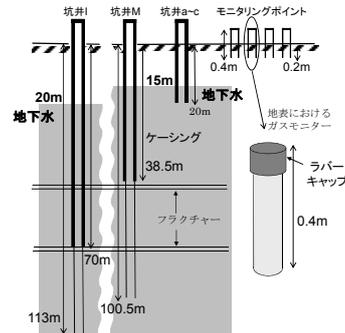


図5 坑井およびモニタリングポイント仕様(右写真:ガスサンプリングと濃度測定)(Susanto et al., 2013)



図6 ガスサンプリングと濃度測定の様相

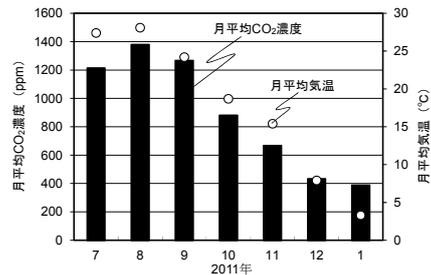


図7 月平均CO₂濃度の変化と月平均気温の変化

(3)試験フィールドの地質構造と地下水流
坑井Iから採取したコアから推察された本フィールドの地質条件は、深度0.0~17.7mは表土および風化花崗閃緑岩、17.7~48.6mは風化花崗閃緑岩、48.6~57.2mは弱風化花崗閃緑岩、57.2~57.6mは細粒花崗岩(脈状)、57.6~113.0mは花崗閃緑岩であった。ボアホールカメラにより、深度79~81mならびに85~87mにおいてフラクチャーの存在が確認された。

各坑井の地下水位を継続的に測定した結果、坑井IおよびMにおいてそれぞれ19.1mおよび14.5m、坑井a、bおよびcはそれぞれ14.6、14.5および14.7mであった。また、電磁式流向流速計を用いて地下水の流向と流速を測定した結果、概ね1cm/secであり、流向は深度によらず概ね東南東への流れであった。採取した地下水のHCO₃濃度は30ppm~60ppmであった。

(4)CO₂バックグラウンドの評価
地表におけるCO₂のバックグラウンドを把

握するために、CO₂の圧入前に各モニタリングポイントのCO₂濃度を測定した。CO₂濃度の測定にはCO₂検知器を用いた。同検出器のガス吸引管の先端に針を接続し、これをラバーキャップに刺し込んでモニタリングポイントのガスを吸引しCO₂濃度を測定した(図7参照)。

(5) CO₂圧入試験

坑井 a および b の孔底から CO₂を圧入し、その圧入前後の地表での各モニタリングポイントの CO₂濃度を測定した。まず坑井 a を用いて CO₂の圧入試験を行ない、その 2 日後に坑井 b を用いて CO₂の圧入試験を行なった。圧力調整器を介して CO₂ ポンプを井戸の坑口に接続し、0.2 MPa の一定圧力条件で CO₂を圧入した。圧入中は接続配管の途中に設置した流量計で流量を計測し、累積圧入量を求めた。坑井 a および b ともに 1 m³の CO₂を圧入した。

(6) H₂および [CO₂+H₂] 混合ガス圧入試験

一般に地中貯留の対象となる CO₂には 1%未満の不純ガスが含まれる。本研究においては貯留対象 CO₂に含まれる不純ガスの一つとして、石油精製プラントから排出され分離される CO₂中に含まれる H₂を指標とした漏洩のモニタリング手法について検討することとした。坑井 b より H₂を圧入し、その圧入前後における各モニタリングポイントの H₂濃度を H₂検知器を用いて測定した。H₂ポンプを圧力調整器を介して坑口に接続し、0.1 MPa 一定圧力で計 0.1 m³圧入した。

4. 研究成果

(1) CO₂漏洩検出実験

深度 100m の坑井に CO₂を 1MPa で 1kg 圧入し、一週間のシャットイン試験を行った結果、CO₂を地中に貯留する際、地中の CO₂濃度は気温や雨水によって影響を受けるため、バックグラウンドの変動と漏洩 CO₂との区別が困難であることが明らかになった。また、苫小牧 CCS では石油製油所で分離・回収した CO₂を地中に貯留することを計画しているが、貯留する際不純物ガスとして 1%の H₂が含まれる。すなわち、H₂ガスをモニタリングすることで CO₂の漏洩を予測できることが示されたことは CCS 対応のモニタリングシステムを構築する上で有用である。

(2) H₂をトレーサとした CO₂漏洩検出実験

CO₂の漏洩を直接的に検知する場合、図 7 に示すように、地層中の自然 CO₂の変動が大きく、試験フィールドのバックグラウンドの変動との相違が少なく、漏洩検出スキームの構築が困難であった。一方、CO₂ガスに不純物として H₂ガスが 1%程度含まれる場合、H₂ガスをトレーサとして利用することが想定される。図 8 および 9 は、H₂ガスならびに [CO₂+H₂] 混合ガス (CO₂:49.5%, H₂:0.5%, N₂:50%) 圧入実験による H₂濃度のモニタリ

ング結果をそれぞれ示す。H₂ガスは自然界にほとんど存在せず、水への溶解や岩石への吸着もほぼないため、H₂ガスの漏洩検知システムが妥当であることが本試験結果から実証された。

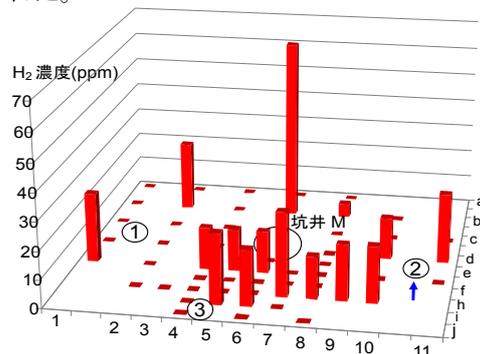


図 8 H₂濃度のモニタリング結果(H₂圧入後 22 時間)

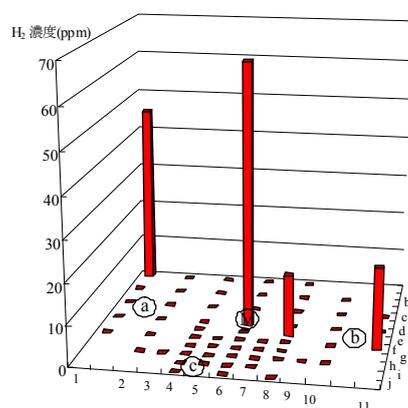


図 9 混合ガス(CO₂:49.5%, H₂:0.5%, N₂:50%)圧入実験による H₂濃度のモニタリング結果(圧入後 4.5 時間後)

(3) CO₂ガスモニタリング装置の開発

本研究では、地表面から大気へ放散される土壌からの CO₂放散フラックスのモニタリング装置を開発し、それを試験フィールドにおいてその適用性の検討を行った。とくに、土壌水分量や温度の季節変動による変化が土壌表面から放散される CO₂放散フラックスに与える影響を調べた。

土壌中から大気へ放散される CO₂放散フラックスを測定する手法として閉鎖チャンバ法に基づいたモニタリング装置(図 10)の開発を行い、その特性の検証を行った。閉鎖チャンバを土壌表面に被せ、その内部に土壌から CO₂が閉鎖チャンバ内に拡散・放散され、時間経過とともに CO₂濃度が指数関数的に増加した後に土壌 CO₂濃度と平衡となることを利用し、フラックスを算定する。濃度測定値はタブレット型のコンピュータに収録される。測定装置全体はバッテリーで駆動し、試験フィールドにおいても電源の制約を受けないようにシステムを構成した。

図 11 は、試験フィールドにおける土壌温度に対する CO₂放散フラックスの測定値を表す。なお、図 12 に本研究で開発された CO₂放散フラックスモニター装置の写真を示す。

(4) CCS および CCUS の全体システムの評価

本研究課題においては、CO₂地中貯留の全体システムやCCUSと呼ばれるCO₂利用および貯留のシステムに関する研究をも同時に進めた (Suzuki et al.,2014: Yousefi-Sahzabi et al., 2014: Ferian et al., 2014 など)。

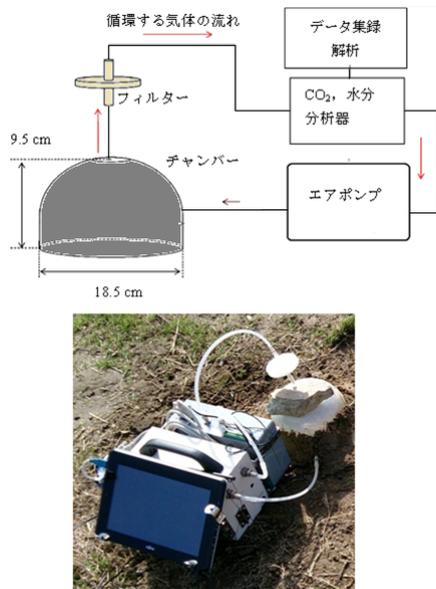


図10 試験フィールドのCO₂放散フラックス測定に用いた移動用測定装置(本研究で開発)

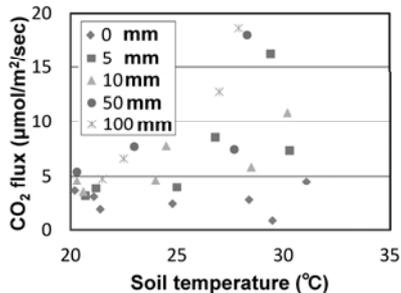


図11 試験フィールドにおける土壌温度に対するCO₂放散フラックスの変化(地表面からの測定深度0~100mm)



図12 本研究で開発したCO₂モニター装置のプロトタイプ

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7件)

- ① 山城輝久, Very Susanto, 菅井裕一, 佐々木久郎: CO₂貯留に対する漏洩モニタリングシステムについての考察, 石油技術協会誌, 77巻5号, pp.388-389, 2012.
- ② 藤井孝志, 菅井裕一, 佐々木久郎, 橋田俊之, 當舎利行, 中尾信典: 超臨界CO₂圧入に伴う来待砂岩および飯館花崗岩の浸

透率の変化, Journal of MMIJ, 129-12, pp.701-706, 2013.

- ③ F. Anggara, K. Sasaki, Y. Sugai, Swelling Measurements of a Low Rank Coal in Supercritical CO₂, International Journal of Geosciences, 4-5, pp.863-870, 2013.
- ④ Y. Sugai, T. Babadagli, K. Sasaki, Consideration of an Effect of Interfacial Area between Oil and CO₂ on Oil Swelling, J. Petroleum Exploration and Production Technology, 4-1, pp.105-112, 2013.
- ⑤ H. Suzuki, A. Yousefi-Sahzabi, Y. Sugai, H. Yousefi, K. Sasaki, Economical considerations on CCS system for geological uncertainty and injection failure, International Journal of Energy Economics and Policy, 4-4, pp.772-784, 2014.
- ⑥ A. Yousefi-Sahzabi, D. J. Davidson, K. Sasaki, A. Nagata, H. Yousefi: Climate technology investment and innovation: Potential benefits of CO₂ capture from the air, Investment Management and Financial Innovations, 11-4, pp.292-303, 2014.
- ⑦ C. Or, K. Sasaki, Y. Sugai, M. Nakano, M. Imai: Numerical simulation of CO₂ gas microbubble of foamy oil, Energy Procedia (Elsevier), 63, pp.7821-7829, 2014.

[学会発表] (計20件)

- ① 菅井裕一, 佐々木久郎, 他2名: CO₂地中貯留を想定した浅層花崗岩層におけるCO₂ガス拡散挙動のモニタリング, 平成24年度資源・素材学会春季大会講演資料, pp.275-278, 2012.
- ② 山城輝久, Very Susanto, 菅井裕一, 佐々木久郎: CO₂貯留に対する漏洩モニタリングシステムについての考察, 石油技術協会春季講演会, 秋田市・秋田ビューホテル, 2012.
- ③ 菅井裕一, 佐々木久郎, 他2名: CO₂地中貯留を想定した浅層花崗岩層におけるCO₂ガス拡散挙動のモニタリング, 資源・素材2012(秋田), 秋田市・秋田大学, 2012.
- ④ 菅井裕一, 湊上雄貴, 佐々木久郎, 他4名: 九大ナチュラルアナログテストフィールドにおけるトレーサー試験, 資源素材学会春季大会, 習志野市・千葉工業大学, 2013.
- ⑤ 湊上雄貴, 菅井裕一, 佐々木久郎: 地下浅層におけるCO₂の拡散とそのモニタリング方法の検討, 資源・素材学会九州支部春季例会 (2) 熊本, 熊本大学, 2013.
- ⑥ 湊上雄貴, 菅井裕一, 佐々木久郎, 福馬聡之, 内藤由和: CO₂の漏洩モニタリング

- システムに関するパイロット試験,平成 25 年度石油技術協会春季講演会,東京・国立オリンピック記念青少年総合センター, 東京, 2013.
- ⑦ 山城輝久, Very Susant, 洲上雄貴, 菅井裕一, 佐々木久郎, Very Susant : 地下水質の連続モニタリングによる CO₂ 漏出の検出について, 平成 25 年度石油技術協会春季講演会, 東京・国立オリンピック記念青少年総合センター, 2013.
- ⑧ 鈴木陽洋, 佐々木久郎, 菅井裕一 : CO₂ 圧入リスクを考慮した CCS システムに対する経済性評価, 平成 25 年度石油技術協会春季講演会, 東京・国立オリンピック記念青少年総合センター, 2013.
- ⑨ 菅井裕一, 佐々木久郎, ほか 3 名 : CO₂ の漏洩モニタリング手法に関するパイロット試験, 資源・素材 2013 (札幌), 札幌, 北海道大学, 2013.
- ⑩ S. Sona, K. Sasaki, Y. Sugai, R. Fujiwara: Numerical Simulation on Solubility of CO₂ in Aquifer, 19th Formation Evaluation Symposium of Japan, JOGMEC-TRC, Chiba, Japan, 2013.
- ⑪ 佐々木久郎, 菅井裕一, ほか 4 名 : CO₂ 貯留サイト上における土壌並びに表層 CO₂ のモニタリングとバンダリーダム C C S プロジェクト, 平成 26 年度資源・素材学会春季講演会, 東京, 東京大学生産技術研究所, 2014.
- ⑫ 菅井裕一, 佐々木久郎, ほか 2 名 : CCS における水素を指標とした二酸化炭素漏洩予測法の検討, 平成 26 年度資源・素材学会春季講演会, 東京, 東京大学生産技術研究所, 2014.
- ⑬ Yousefi Sahzabi Amin, 佐々木久郎, 菅井裕一: 気候変動抑制のための大気中の二酸化炭素捕捉技術の現状と展望, 平成 26 年度資源・素材学会春季講演会, 東京, 東京大学生産技術研究所, 2014.
- ⑭ 菅井裕一, 佐々木久郎, ほか 4 名 : 土壌 CO₂ フラックスの長期連続測定法の開発, 資源・素材 2014(熊本), 熊本大学工学部, 2014.
- ⑮ Ferian Anggara, 佐々木久郎, 菅井裕一: CO₂-ECBMR に関連した石炭特性の測定と数値シミュレーション, 資源・素材 2014(熊本), 熊本大学工学部, 2014.
- ⑯ Salmawati, K. Sasaki, Y. Sugai, N. P. Widodo: Preliminary Measurements of Natural Soil CO₂ Concentration in Case of CO₂ Leakage in CCS Site, Int. Symp. on Earth Science and Technology 2014, Inamori Memorial Hall, Fukuoka, Japan, 2014.
- ⑰ 菅井裕一, 佐々木久郎, Salmawati : CCS における CO₂ の漏洩モニタリングを目的とした地表 CO₂ 濃度の深度分布の調査, 資源・素材学会平成 27 年度春季大会, 千

葉・千葉工業大学, 2015.

- ⑱ 佐々木久郎, 菅井裕一, 川崎航: CCS フィールドにおける地表面 CO₂ ガスフラックスモニターの開発, 資源・素材学会平成 27 年度春季大会, 千葉・千葉工業大学, 2015.
- ⑲ C. Or, K. Sasaki, Y. Sugai, M. Nakano, M. Imai: Numerical Simulation of CO₂ Gas Microbubble of Foamy Oil, 12th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-12), Austin, USA, 2014.
- ⑳ R. Nguete, K. Sasaki, Y. Sugai, Said-Al Salim, M. Nakano: Gas solubility and acidity effects on heavy oil recovery at reservoir, 20th Formation Evaluation Symposium of Japan, JOGMEC TRC, Chiba, 2015.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 2 件)

名称 : 地下に貯留した二酸化炭素の地表面への漏出の早期検出装置および方法

発明者 : 佐々木久郎, 菅井裕一

権利者 : 佐々木久郎, 菅井裕一

種類 : 特許

番号 : 特願 2012-22840

出願年月日 : 平成 24 年 9 月 26 日

国内外の別 : 国内

名称 : ガスモニター装置

発明者 : 佐々木久郎, 菅井裕一, 内藤由和, 牧野英一郎

権利者 : 九州大学, 中外テクノス (株)

種類 : 特許

番号 : 特願 2014-78125

出願年月日 : 平成 26 年 4 月 04 日

国内外の別 : 国内

〔その他〕

ホームページ等

CO₂ 地中貯留ナチュラルアナログテストフィールドプロジェクト

<http://inas-pandp.mine.kyushu-u.ac.jp/index.htm>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐々木 久郎 (SASAKI, Kyuro)

九州大学大学院工学研究院・教授

研究者番号 : 60178639

(2) 研究分担者

菅井 裕一 (SUGAI, Yuichi)

九州大学大学院工学研究院・准教授

研究者番号 : 70333862