

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 3 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760159

研究課題名(和文)CO₂マイクロ液滴を用いた安定地中隔離技術の開発研究課題名(英文)Development of stable geological storage technology by using CO₂ micro droplets

研究代表者

植村 豪 (Uemura, Suguru)

東京工業大学・理工学研究科・助教

研究者番号：70515163

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：人為的に排出されるCO₂を回収し、地下帯水層に圧入するCO₂地中隔離に期待が寄せられているが、地表へのCO₂漏洩リスクを低減させ、社会的受容性を高める安定性の高い新しい地中隔離手法の確立が求められている。そこで本研究では超臨界CO₂をナノスケールまで微粒化して帯水層に圧入し、浮力を分散させる安定性の高い地中隔離手法を提案した。実際の帯水層内と同様の高温・高圧条件においてナノスケール超臨界CO₂を生成し、微粒化状態の観察と粒径分布の時間発展の計測から、ナノスケール超臨界CO₂の安定性を調べた。さらに帯水層を模擬した多孔質内にナノスケール超臨界CO₂を圧入し、X線CTを用いてその挙動を可視化した。

研究成果の概要(英文)：CO₂ geological sequestration is one of the most feasible methods for substantial reduction of CO₂ emissions into the atmosphere. Under conditions of temperature and pressure in aquifer, CO₂ becomes supercritical state and upward migration of CO₂ is caused by the buoyancy force. In order to reduce the leakage risk, injecting nano-scale CO₂ droplets into the aquifer is proposed in this study. Nano-scale supercritical CO₂ droplets were generated with surfactant and investigated their time evolution of its diameter and the distribution experimentally. At high CO₂ density and low temperature condition, stable supercritical CO₂ droplets were observed. Supercritical CO₂ droplets that were injected into the porous media were observed by using X-ray CT. The CO₂ droplets grew at pore-scale, however, were stably trapped in each pore by capillary force.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：物質輸送 CO₂地中隔離

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、化石燃料から原子力、再生可能エネルギーへの転換が求められている。しかし原子力の利用拡大は困難な状況にあり、再生可能エネルギーについても低コスト、高効率化に向けて長期的な研究開発が必要であることから、10-20 年は依然として化石燃料を基盤とするエネルギー供給体制が続くと予測されている。したがって、今後も化石燃料の消費に伴って排出される膨大な CO₂ に対し、量的寄与と実効性を有した CO₂ 削減技術が必要不可欠であることから、火力発電所などの大規模排出源から CO₂ を回収して地下や海底下に隔離する二酸化炭素回収隔離 (Carbon Capture and Sequestration, CCS) が注目されている。特に従来の天然ガス掘削や原油増進回収技術が応用できる CO₂ 地中隔離技術は、実用化に最も近い技術として期待され、既に海外では約 100 万トン/年の CO₂ 貯留も実施されている。

(2) CO₂ 地中隔離は地下 700-3000 m の帯水層を対象としており、水飽和した多孔質構造中 (空隙率 10-20%, 空隙径 1-100 μm 程度) に CO₂ を圧入する。地下の温度、圧力条件において CO₂ は液体または超臨界状態となり、密度が水よりも小さいために浮力を受けて帯水層中を 2-3 cm/year 程度の速度で上昇する。従って CO₂ の漏洩を防ぐため、帯水層上に不透過層 (キャップロック) が存在する地質構造を利用した構造性トラップが国際的に主流の貯留手法となっているが、日本周辺では構造性トラップに適した地質構造は限定されており、さらに CO₂ 排出源から遠距離に位置していることから CO₂ 輸送コストが増大し、CCS の普及を妨げる一因となっている。また、キャップロックに亀裂が存在した場合の CO₂ 漏洩リスクを低減させて、社会的受容性を高めた技術を確認することも重要な課題であるが、抜本的な解決策は得られていない。

2. 研究の目的

(1) 本研究では、CO₂ の貯留安定性を大幅に促進させる新しい地中隔離技術として、高圧水中で CO₂ をマイクロ・ナノスケールに微粒化して帯水層中に隔離する手法を提案し、その基礎メカニズムを明らかにする。帯水層中で CO₂ が受ける浮力はその大きさに比例するため、CO₂ を多孔質空隙径 (直径 1-100 μm 程度) と同程度以下の液滴に微粒化してエマルション状態とすれば、浮力が多孔質構造中で分散され、CO₂ 液滴は多孔質構造の空隙部分で界面張力によって保持されるため、安定した状態で CO₂ が貯留できると考えられる。本研究では高圧環境下で実際に CO₂ をマイクロ・ナノスケールの液滴に微粒化すると共に、実際の多孔質構造中に注入した際に CO₂ 液滴がトラップされる過程を捉えることを研究の最終目的とする。

3. 研究の方法

(1) 本研究では圧損の少ないスタティックミキサーを有した CO₂ 微粒化装置とマイクロフォーカス X 線 CT を用い、CO₂ の微粒化と砂岩内部における CO₂ の挙動可視化を実現する。

(2) CO₂ 微粒化装置は微粒化過程の観察および計測を容易にするため、循環流路とし、さらにヒーターによって温度制御を可能とした。実験では、まず流路内に水、および CO₂ の微粒化を促進させるための界面活性剤 (トリシロキサン) を加え、CO₂ が超臨界状態になるよう帯水層と同等の温度と圧力に設定する。ポンプにより循環させることで、スタティックミキサーを通過させて微粒化を行う。生成した超臨界ナノスケール CO₂ を観察窓から観察すると共に、動的光散乱測定装置を用いて粒径分布を測定した。

(3) 多孔質内部における超臨界ナノスケール 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 CO₂ を微粒化した後、多孔質内部に圧入した。圧入後は温度、圧力を一定に維持し、多孔質内部における CO₂ の挙動を観察した。

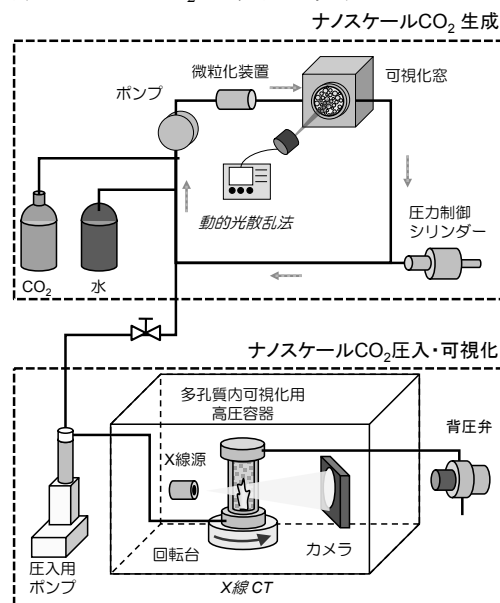


図1 実験装置図

4. 研究成果

(1) 水と CO₂ の体積比 1:1, 界面活性剤水溶液濃度 2 vol%, ポンプ流量 400 ml/min のもで、表 1 に示すように温度、CO₂ の密度、圧力をパラメーターとして微粒化実験を行い、ポンプ停止直後から動的光散乱測定装置を用いて個数換算粒径分布およびザウター平均粒径の時間変化を計測した。Exp (a) における粒径分布の測定結果を図 2 に示す。ポンプ停止直後のザウター平均粒径は 17 nm であった。14 分後の粒径分布は右にシフトして粒径が増加しており、複数の液滴から単一の液滴への合が進んでいる。一方、19 分後では、14 分後の粒径分布のピークに対して、大きなピ

ークと小さなピークの 2 つに分岐している。これは液滴の合一だけでなく、液滴径に依存した局所的な溶解・析出によるオストワルドライプニングも生じていると考えられる。次に、CO₂ の密度変化による影響を調べるために、Exp (b)における条件で実験を行い、Exp (a)との比較を行った。図 3 はポンプ停止後からのザウター平均粒径の時間変化を示したものであり、CO₂ の密度が 0.7 g/ml の Exp (a)と比較すると、密度 0.4 g/ml の Exp (b)では平均粒径増加のスピードが速く、それぞれの時間における平均粒径が大きいことが分かる。これは CO₂ の密度が小さいと界面活性剤分子の CO₂ への溶解度は小さくなり⁽²⁾、界面活性剤の CO₂ への吸着量が減少して界面張力が高くなるため、ナノスケール CO₂ の安定性が低下したと考えられる。

(2) 次に温度変化による影響を調べるために、Exp (c)と Exp(a)の実験結果を比較した。なお、Exp (c)の 27 °C においては CO₂ は液体状態である。ザウター平均粒径の時間変化を比較すると、ポンプ停止直後からの平均粒径の時間変化には明確な違いが見られないが、ポンプ停止 20 分以降では Exp (c)の温度 27 °C のザウター平均粒径の方が小さいことが分かる。これは、温度が低い条件では界面活性剤の親水基と水分子間との水素結合が強くなるため、界面張力は低下し、ナノスケール CO₂ が安定化したと考えられる。

表 1 実験条件

	T(°C)	ρ_{CO_2} (g/ml)	P(MPa)
Exp (a)	32	0.7	8.7
Exp (b)	32	0.4	7.5
Exp (c)	27	0.7	7.0

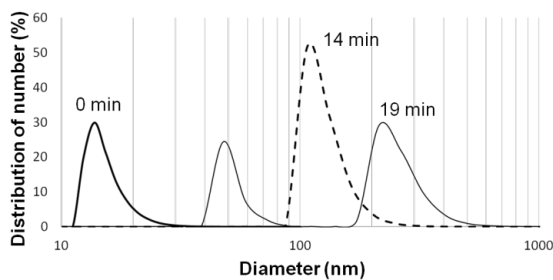


図 2 CO₂ 液滴の粒径分布

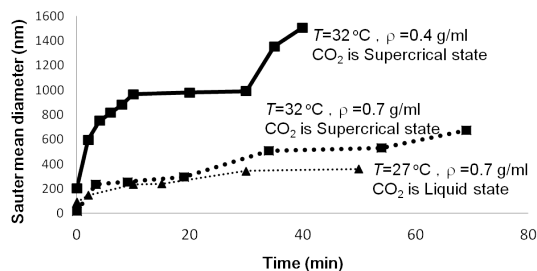


図 3 ザウター平均粒径の変化

(3) 多孔質内部に Exp (a)に基づいて生成したナノスケール CO₂ を圧入し、その経時変化を X 線 CT で観察した。図 4 は CO₂ のみを抽出して三次元再構成した画像である。圧入 10 分後では粒径が X 線 CT の空間分解能 (20 μm) 以下で抽出されていないナノスケール CO₂ が存在するが、12 時間後には CO₂ がマイクロスケールの空隙サイズまで成長していることが分かる。19 時間後においては、12 時間後の段階では CO₂ が存在していなかった空隙 (図 4 丸印) まで浸透していることが分かる。24 時間後においても分布はほぼ同様であり、毛管力によって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、超臨界ナノスケール CO₂ 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、CO₂ に働く浮力は依然として小さく、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った。

(4) 温度、CO₂ 密度がナノスケール超臨界 CO₂ の安定性、粒径増加のメカニズムに及ぼす影響を実験により明らかにした。また、多孔質内部に圧入されたナノスケール超臨界 CO₂ は空隙スケールまで粒径が増加するものの、毛管力によって安定してトラップされており、地表への CO₂ 漏洩リスクを大幅に低減した、社会受容性の高い CO₂ 地中隔離を実現できる可能性を示した。

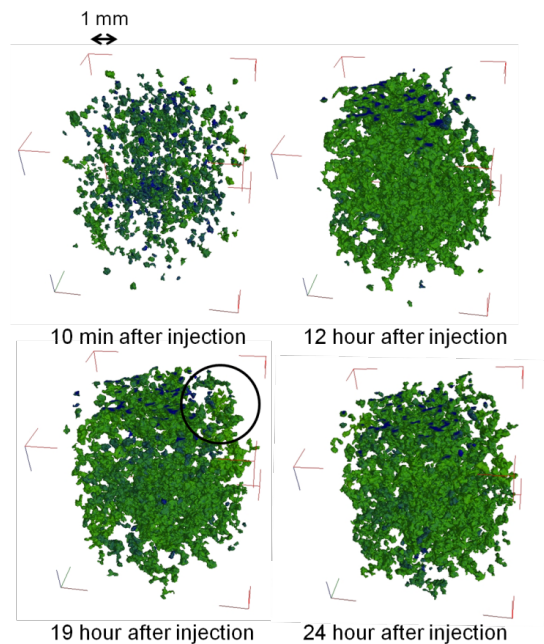


図 4 多孔質内の CO₂ 分布の三次元可視化

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 0 件)

〔学会発表〕（計 3 件）

- (1) 近藤史也, 植村豪, 津島将司, 平井 秀一郎, “安定地中隔離を目指した超臨界 CO2 ナノスケール化”, 第 50 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, Vol. II+III, pp.548-549, 仙台 May29-31, 2013.
- (2) S. Uemura, Y. Matsui, A. Noda, S. Tsushima, S. Hirai, “Nanosized CO2 droplets injection for stable geological storage”, 11th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, Kyoto, Nov 18-22, 2012.
- (3) 植村豪, 野田豊人, 松井陽平, 津島将司, 平井秀一郎, “ナノスケール CO2 液滴による安定地中隔離技術開発”, 平成 24 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 24 年度石油技術協会春季講演会), 秋田, Jun5, 2012.

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：7 0 5 1 5 1 6 3