

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 3 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289331

研究課題名(和文)非構造的帯水層への炭酸ガス地中貯留のメカニズム解明のための研究

研究課題名(英文) Research on the mechanism of carbon dioxide gas storage in the non structural aquifer

研究代表者

三谷 泰浩 (MITANI, YASUHIRO)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：20301343

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、我が国における炭酸ガスの貯留・固定化技術に寄与することを目的とし、特に非構造的帯水層への炭酸ガスの貯留技術を確立するために、岩石内での炭酸ガスの流動、貯留、間隙水中への溶解について室内実験からそのメカニズムを明らかにした。その結果、炭酸ガスは岩石中を選択的に浸透しながら浸透するとともに岩石内に貯留し、岩石の空隙の約3割程度を飽和させることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In order to clarify the mechanism of the CO<sub>2</sub> flow in the low permeable rock, the permeability and storativity of CO<sub>2</sub> injected into low permeable rock has been evaluated. The experiment has been set up to reproduce the similar condition of deep underground reservoir. As a result, it has been possible to observe step by step the change of the differential pressure between both ends of specimen. Furthermore, the relative permeability and specific storage of rock under supercritical CO<sub>2</sub> injection has been examined by the theoretical analysis of flow pump permeability test incorporating Darcy's law for two-phase flow. It is observed that CO<sub>2</sub> has been transmitted gradually while CO<sub>2</sub> stored in the rock. It is also clarified that residual water has existed in specimen after showing the constant differential pressure in the end of the experiment. That means the carbon dioxide is saturated about 30% in the rock porosity while selectively penetrate the rocks.

研究分野：土木工学

キーワード：炭酸ガス地中貯留 透水・透気 難透過性岩石 室内試験

### 1. 研究開始当初の背景

二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) など温室効果ガスに起因する地球温暖化問題は、気候変動に大きな影響を与えるとの予測が決定的になり、この問題に対して世界各国が協調・連携し、解決するという共通認識が構築されてきた。CO<sub>2</sub>の排出を削減するための具体的方策には、人口増加の抑制、経済活動の縮小、GDPあたりのエネルギー消費量の減少、エネルギー消費量あたりのCO<sub>2</sub>発生量の減少、発生したCO<sub>2</sub>の大気放出の制限などが挙げられ、前者2つは社会経済的な理由で決定されることを考えると、工学的技術により対処するためには、「省エネルギーの推進」、「燃料転換」、「CO<sub>2</sub>の回収・貯留」といった技術がその解決策と考えられ、CO<sub>2</sub>を大気圏に放出させない貯留・固定化技術開発は、CO<sub>2</sub>削減を担う1つの重要な環境・エネルギー技術と位置づけられ、早急な技術の確立が求められている。

このような社会的背景の中、世界各国でCCS (Carbon Dioxide Capture and Storage: 二酸化炭素回収貯留技術) プロジェクトが実施されており、日本でも新潟県長岡市にて小規模な圧入実証実験が行われた。また、石油の2次増進回収技術 (EOR) としての圧入が米国で、北海のSleipnerでは実用的なCO<sub>2</sub>の圧入が行われており、CO<sub>2</sub>の圧入の実施には大きな問題はないものと考えられている。しかし、CO<sub>2</sub>が圧入された地層の中でどのような挙動をとるのか未知の部分が多く、今後のさらなる研究開発の必要性が指摘されている。

CO<sub>2</sub>地中貯留は、天然ガスや石油の貯留にその科学的根拠を求めており、長い時間資源を閉じ込めておくような地質構造がその貯留対象となっている。長岡での地中貯留実験は、ガス田上部の帯水層への圧入を行っており、このような構造的帯水層への圧入は欧米の圧入形態であり、石油やガス

田などが発達している地域では説得力のある地中貯留方法である。しかし、変動帯に位置する我が国では、CO<sub>2</sub>の漏洩を防ぐために必要なキャップロックが完全無欠で、かつ、割れ目などからの漏洩箇所が全くないことを証明することは難しい。またそのような適地は限定されることから、発生源からのCO<sub>2</sub>の輸送費用の問題なども生じることとなる。このような状況の中で、水溶性天然ガスに類似性を求めた非構造的帯水層貯留という考えが提案されている。これは、圧入されたCO<sub>2</sub>は非構造的帯水層において、溶解するか気体ないしは超臨界状態のCO<sub>2</sub>として滞留することになり、地質構造に由来する貯留メカニズムを必要としないことから、我が国での貯留可能性が高い現実的な方法として着目されつつある。

### 2. 研究の目的

超臨界状態のCO<sub>2</sub>を注入した際に非構造的帯水層の貯留層内で起こっている事象が解明できれば、それらの現象を最も効果的に検出する方法が検討でき、効果的なモニタリングを検討することができる。さらに、貯留層内の現象をシミュレーションにより数値的に再現することができれば、リスク評価などの評価手法の開発や法的整備、規制などへの基礎を作ることができると考えられる。そこで、本研究では、貯留層となりうる岩石内でのCO<sub>2</sub>の流動・貯留・固定化現象とそのメカニズムを明らかにし、現象をシミュレーションするための数値モデルを開発することを目的とする。

### 3. 研究の方法

既存の汎用透水試験装置を改良し、国内の代表的な堆積岩試料を用い、CO<sub>2</sub>の注入実験を行い、透過・貯留・溶解特性を求めるとともに、実験結果から特に非構造的帯水層へのCO<sub>2</sub>の貯留技術を確立するために、岩石内でのCO<sub>2</sub>の流動、貯留、間隙水中への溶解につ

いて**室内実験**からそのメカニズムを明らかにし、必要となる各種特性値を求める。

#### 4. 研究成果

##### (1) 実験システム

CO<sub>2</sub>地中貯留の対象となる貯留層は、深度800~1,200 mである。ここでの地下の地圧および温度は、CO<sub>2</sub>の臨界点(圧力:7.38 MPa, 温度:31.1 °C)を超え、圧入されたCO<sub>2</sub>は超臨界状態となる。そのため、実験システムは試験体に注入されるCO<sub>2</sub>を超臨界状態に維持する必要がある。また、流体を注入する装置にはシリンジポンプを用いることで、地下深部と同等の間隙水圧を再現し、難透過性堆積岩に対して比較的低い動水勾配の条件下で超臨界CO<sub>2</sub>を岩石に注入することができる。実験システムの概略図および主な実験装置を図-1に示し、その特徴を以下に整理する<sup>2)</sup>。

1) シリンジポンプは試験体上流側にCO<sub>2</sub>注入用として2台(図-1のSyringe pump A, B)、試験体下流側に圧力貯留槽として2台(図-1のSyringe pump C, D)設置する。シリンジポンプは温調ジャケットを装着しており、温度制御した水を循環させることでポンプ内の温度を一定に保つ。さらに、シリンジポンプ(図-1のSyringe pump E)を用い、三軸容器にシリコンオイルを充填することで、試験体に対して拘束圧を載荷する。

2) CO<sub>2</sub>透過・貯留実験では、フローポンプ法による透水試験法を適用する。本試験法では通常、差圧計を用いて試験体両端間に生じる圧力差を高精度に計測するが、本研究ではその差圧がどの程度の値で一定となるか予測できないため、圧力計を試験体上流側および下流側の両方に設置する。圧力計の分解能は50 cmH<sub>2</sub>Oであり、上流側圧力および下流側圧力を計測し、試験体両端間に発生する差圧を求める。

3) 超臨界CO<sub>2</sub>は僅かな温度変化により流体の粘性や密度等の流体移動特性に影響する物理特性が変化する。そのため実験中の正確な温度管理が必要不可欠となる。そこで、外気温の変化による実験システムの温度変化を極力抑えるため、実験装置を特殊空調設備で温度管理された恒温室内に設置する。さら

に、その中に簡易型恒温室を設置し実験装置を格納することで、実験時の水およびCO<sub>2</sub>の温度変化を最小限に軽減する。

4) 配管を恒温循環水槽(図-1のConstant temperature water tank)の中にできる限り設置し、配管内流体の温度変化を最小限にとどめる。また、透過流体の相状態を把握するため、上流および下流の圧力計の位置に熱電対を設置し、配管内流体の温度と圧力を計測する。

5) 試験体下流側に、セパレータ(超臨界CO<sub>2</sub>抽出用高圧容器EV-3-50-2型、内容量50 ml, 常用圧力30 MPa, 常用温度100 °C)を設置する。この容器を用い、試験体から流出した水・CO<sub>2</sub>の混合流体をセパレータに通して、密度差によって水とCO<sub>2</sub>が分離し、下流側シリンジポンプにCO<sub>2</sub>を、セパレータ内に水を集める。また、セパレータの下部に最小表示0.01 gの電子天秤を設置し、セパレータの重量測定を行う。

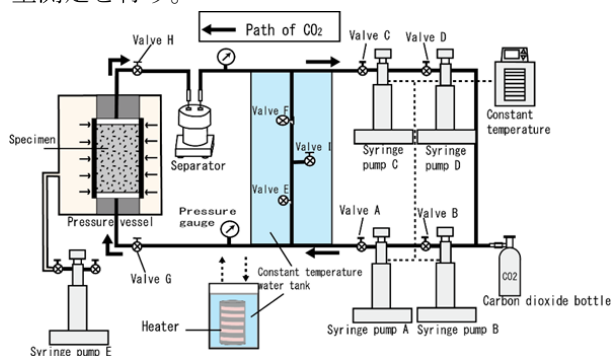


図-1 実験システム

##### (2) 超臨界CO<sub>2</sub>透過・貯留実験

試験体は直径5.0 cm, 高さ10.0 cmの円柱形に整形した相浦砂岩(長崎県佐世保市相浦産)を用いる。相浦砂岩の間隙率は11.9%, 単位体積質量は2.37 g/cm<sup>3</sup>である。試験体側面にはCO<sub>2</sub>漏洩防止のためサラン樹脂, セメダイン, シリコンを順に添付する。水飽和状態の試験体を三軸容器内に設置し、実験システムを37 °C, 拘束圧を20 MPaで制御する。また、実験システム内の配管, セパレータを水で満たし、初期間隙圧を10 MPaで制御する。以上の準備後、岩石の透水特性を把握するために水飽和状態の試験体に対しフローポンプ法により流量10 μL/minで透水試験を行う。その際、下流側ポンプを10 MPaの定圧で制御する。これは上流から一定流量の流体を注入した時に生じる間隙水圧の上昇を抑え、長

時間の実験を行うためである。透水試験終了後、試験体に関隙水圧 10 MPa を残した状態で、実験システム内の配管とセパレータを乾燥させ、超臨界 CO<sub>2</sub> で満たす。上流側ポンプを定流量 10 μL/min, 下流側ポンプを定圧 10 MPa で制御し、超臨界 CO<sub>2</sub> を注入する。

### (3) 実験結果と CO<sub>2</sub> 飽和度の算出

超臨界 CO<sub>2</sub> 透過・貯留実験により得られた試験体両端に生じる差圧の時間変化を図-2 に示す。

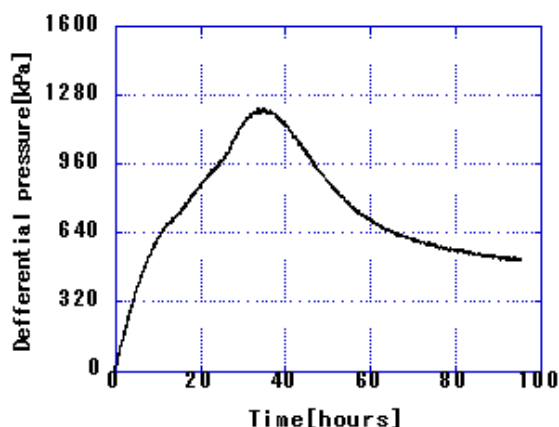


図-2 試験体上下端に生じる差圧の時間変化

図に示すように4段階の段階的な差圧変化が確認できる。差圧が上昇を始め、上昇速度が一旦緩やかになる1段階目、再び差圧が急上昇し、ピーク値に達する2段階目、その後差圧が減少を始める3段階目、そして最終的に減少速度が緩やかになる4段階目がみられる。第1段階目の実験開始から10.5時間では算出された透水係数は  $1.24 \times 10^{-8}$  cm/sec であり、透水試験の結果とほぼ同じ値を示すことから、注入された CO<sub>2</sub> が配管内の水を押し出し、試験体内を透過している状態であると考えられる。第2段階目の10.5~34.1時間では差圧が急激に上昇を続けていることから CO<sub>2</sub> は試験体下流側に達しておらず、試験体内で CO<sub>2</sub> が空隙内の水を押し出しながら緩やかに透過し、CO<sub>2</sub> の流路が形成されると考えられる。そして、差圧の上昇が徐々に緩やかとなり、一旦ピーク値 1,200 kPa に達する。第3段階目の34.1時間~60.0時間では、差圧は減少を始め、CO<sub>2</sub> が試験体下流側に達し、

水と CO<sub>2</sub> が断続的に排出されている状態から、連続的な CO<sub>2</sub> の透過現象に近づくことで徐々に差圧が減少したものと考えられる。そして第4段階目の60.0~95.4時間以降も差圧は定常状態となっていないことから、試験体内の CO<sub>2</sub> の流路が拡大を続けていると考えられる。

次にセパレータの重量の時間変化および水と CO<sub>2</sub> の密度差により算出したセパレータ内の水の容量の時間変化をそれぞれ図-3 に示す。

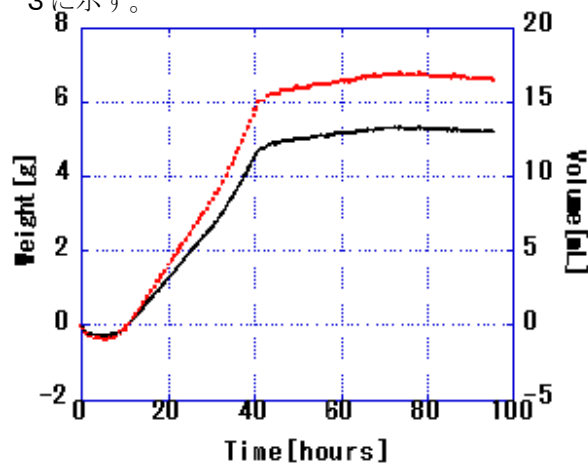


図-3 セパレータ内の重量の時間変化と算出した水容量の時間変化

実験開始から10.5時間は容量が減少している。これは実験を開始する際に、三軸容器内の温度が 37.0 °C まで上昇していないことが原因と考えられ、セパレータ内の重量の時間変化が減少するためである。10.5~34.1時間では容量が約 10.2 mL 増加し、34.1~42.6時間では CO<sub>2</sub> が試験体内の水を押し出し、下流側配管の水がセパレータ内に貯まり、容量は増加する。42.6~73.3時間では容量の増加は緩やかになり、73.3時間以降の容量の減少は上流側ポンプの CO<sub>2</sub> 補充作業による影響と考えられる。また上流側ポンプの送り量、下流側ポンプの引き量の時間変化を図-4 に示す。実験開始から10時間では、上流側ポンプの送り量、下流側ポンプの引き量の差は 3.70 mL であり、上流側配管内の水 (3.74 mL) とほぼ等しく、試験体内へ CO<sub>2</sub> は透過していないと考えられる。

以上の実験結果から、試験体内の CO<sub>2</sub> 容量から推定した CO<sub>2</sub> 飽和度の時間変化を図-5 に示す。実験開始から10時間までは、試

験体内へ CO<sub>2</sub>は透過しておらず、CO<sub>2</sub>飽和度の値は 0 となる。10.5～34.1 時間では上流側ポンプの送り量，下流側ポンプの引き量の差を岩石内の CO<sub>2</sub>貯留量と考えると，CO<sub>2</sub>飽和度が 0.23 まで増加する。34.1～42.6 時間では CO<sub>2</sub>が試験体内の水を押し出し，下流側配管内の水がセパレータ内に貯まると考え，セパレータ内の水の容量の時間変化から CO<sub>2</sub>飽和度を求めた。42.6～73.3 時間では，セパレータ内の水の容量の増加量を試験体内における CO<sub>2</sub>の流路の拡大に相当する容量と考え CO<sub>2</sub>飽和度が 0.32 となる。

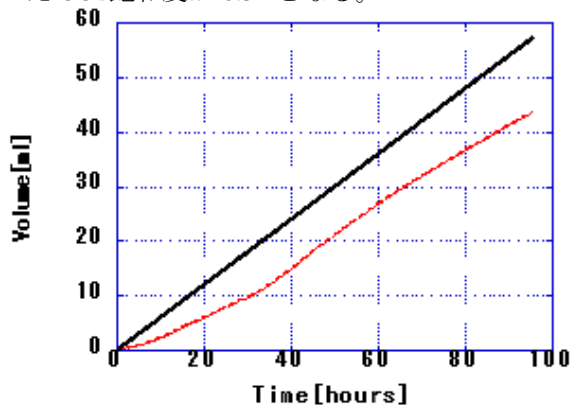


図-4 上流側ポンプの送り量，下流側ポンプの引き量の時間変化

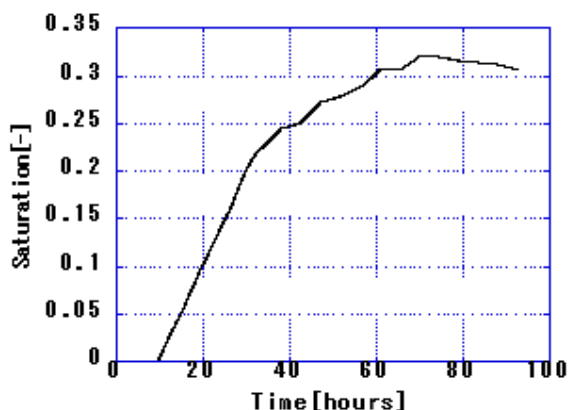


図-5 CO<sub>2</sub>飽和度の時間変化

さらに，実験終了後に計測したセパレータ内の水容量は 16.16 mL であった。この値から試験体の上下流の配管，ポーラスメタルの空隙を満たす水容量を差し引くと，実際に試験体から排出された水の容量は 7.49 mL となる。一方で算出した CO<sub>2</sub>飽和度(0.32)に相当する水容量は 7.47 mL であり，その差は 0.02 mL となることから，算出した飽和度(0.32)が妥当であることが示された。

## 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 0 件)

[学会発表] (計 5 件)

- ① 本田博之，三谷泰浩，池見洋明，野口拓也，難透過性岩石における CO<sub>2</sub>透過・貯留特性の評価，第 34 回西日本岩盤工学シンポジウム論文集，pp.34-42,2013.
- ② 三谷泰浩，池見洋明，野口拓也，本田博之，フローポンプ法を用いた岩石の CO<sub>2</sub>透過・貯留特性の実験的評価，第 42 回岩盤力学に関するシンポジウム論文講演集，pp.314-319, 2014.
- ③ H. Honda, Y. Mitania, H. Ikemi and K. Kitamura; Evaluation of Permeability and Specific Storage of a Low Permeable Rock Injected by Supercritical CO<sub>2</sub> Using Flow Pump Method, Proceedings of the 8th Asian Rock Mechanics Symposium, pp.14-16, 2014
- ④ H.Honda, Y.Mitani, H.Ikemi, K.Kitamura, Permeability and Storativity of Low Permeable Rock under the Supercritical CO<sub>2</sub> Injection Using Flow Pump Method, Proceedings of the 13th International Congress of Rock Mechanics, 2015.
- ⑤ 高木進之介，三谷泰浩，池見洋明，本田博之，難透過性堆積岩の超臨界 CO<sub>2</sub>透過実験における飽和度の実験的評価に関する研究，第 35 回西日本岩盤工学シンポジウム，2015.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

三谷 泰浩 (MITANI, Yasuhiro)  
九州大学大学院・工学研究院・教授  
研究者番号：20301343

### (2) 研究分担者

池見洋明 (IKEMI, Hiroaki)  
九州大学大学院・工学研究院・助教  
研究者番号：90380576