多様な岩石の超臨界CO2透過実験を 実現するための 新しい実験システムの開発

舟津薫輝1*・三谷泰浩2・北村圭吾3・松尾憲弥1・大久保裕一4

¹九州大学大学院 建設システム工学専攻(〒819-0395 福岡県福岡市西区大字元岡744)
²九州大学大学院 工学研究院 付属アジア防災研究センター(〒819-0395 福岡県福岡市西区大字元岡744)
³九州大学 カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所(〒819-0395 福岡県福岡市西区大字元岡744)
⁴九州大学 工学部 地球環境工学科(〒819-0395 福岡県福岡市西区大字元岡744)
*E-mail: Funatsu.Masaki.104@s.kyushu-u.ac.jp

Key Words: 岩石の透過性, 岩石の貯留特性, CO2貯留技術

1. はじめに

CO₂回収・貯留技術(CCS)は、CO₂排出量を削減し、地 球温暖化対策となる有効な技術として世界的に注目され ている.岩盤内に注入されたCO₂について、隔離の安全 性および周辺環境の保全の観点から、その移動特性や貯 留特性といった挙動を把握する必要がある.これを実現 するためには、岩盤内でのCO₂挙動の予測が重要となり、 そのためには、室内において貯留層原位置における圧 力・温度を再現した上で岩石に対しCO₂を圧入する室内 試験が有効である.先行研究¹では、地下深部条件を再 現した実験システムを用いて各種岩石へのCO₂注入試験 を行ったが、岩石の測定用センサーの取り付け数の制限、 ポンプのCO₂容量不足、およびそれに伴うCO₂補充作業 のための実験室への出入りによる実験室内の温度の不安 定化、といった課題が生じた.

本論文では、先行研究で生じた課題を解決するために 実験システムの改良を行い、CO2の岩石内の挙動をより 正確に再現するCO2透過実験システムの開発を目的とし、 セルの改良、実験室の改良、実験システムの改良、お よび導入した連続フローシステムについて述べる.

2. 実験システムの開発

(1) 改良にあたっての設計思想

図-1に従来の実験システムの写真,図-2に従来の実験シ

ステムのシステム図を示す.前述の通り,従来の実験シ ステムにおける課題は,試験体へのセンサー取り付け数 が制限されている点,および実験中の温度制御が不安定



図-1 実験システム写真



図-2 実験システム図

となっている点である.温度に関する課題は,実験中に 生じるCO2補充作業による恒温ビニルハウスの開放が原 因の一つであると考えられる.そのため,長期間の実験 においてもCO2の補充作業を必要としないように,CO2 を実験システム内で循環させるための機構が必要である と考え,それを可能とするための新システムの導入を検 討する.また,CO2補充作業以外でも,不測の事態によ り実験中に恒温ビニルハウス内に入っての作業が必要に なる可能性は考えられる.そのため,実験中のビニルハ ウス開閉が実験システム内に影響を及ぼさないよう,実 験システムの断熱構造の見直しを行う.

本節では、従来の実験システムで提示された課題をもと に、本実験システムへの改良案を提案し、実験システム に加えた変更点について述べる.

(2) セルの改良

従来の実験システムで用いた試験体の寸法では、測定用 センサーの取り付け可能な数が制限され、CO2透過メカ ニズムを詳細に把握するためのセンサー取り付け箇所が 十分に確保できなかった.そこで、センサーの取り付け 可能な数を増やし、様々なデータ取得を可能にするため、 大きな試験体に対応可能な、新たな圧力容器を設計した (図-3、図-4).新たな圧力容器の設計にあたり、試験体 につながるセンサー等の取り回しを考慮した結果、内径 を80 mmとした.この新たな圧力容器は、最大拘束圧30 MPa、温度40 ℃の地下深部圧力・温度条件下において、 最大直径50 mm、全長100 mmの円柱供試体までの対応が 可能であり、従来よりも多くの測定用センサーの取り付 けを可能としている.

また、岩石ひずみや弾性波速度などのセンサーを取り出 すためのフィードスルーは、同軸型、多軸型の2種類を それぞれ任意の数設置可能とし、容器上部に最大20本設 置することができるようにしている(図-5).

(3) 恒温室の改良

従来の実験システムでは、空調機を用いて25 ℃に制 御した恒温室の中に実験システムを含むビニルハウスを 設営し、その中を温調器を用いて40 ℃に調整する、と いう温度制御方法をとっていた.しかしその状態だと、 実験時に作業のためにビニルハウスへの出入りが生じた 場合、三軸容器内の温度が不安定となってしまうため、 実験時の作業が難しくなっていた.そのため、図-6に示 すように、恒温ビニルハウス内で、さらに断熱材により 実験システムを覆うことで、恒温ビニルハウス内への出 入りが実験システムに直接的な影響を与えにくいように する.この断熱材で覆われた実験システム内を便宜上断 熱エリアと称し、恒温室、恒温ビニルハウス、断熱エリ アの三段階で温度制御を行う仕組みを、三重恒温システ ムと称する.三重恒温システムを用いることにより、恒 温ビニルハウス内への人の出入りが恒温ビニルハウス、



図-3 セル写真



図-4 セル概略図



図-5 フィードスルー取り付け位置



図-6 三重恒温システム

およびその中の断熱エリア内の温度に影響を及ぼさない ようになり、作業の円滑な進行が可能となる.

(4) 実験システム内の改良

実験室の改良に並行して、実験システム内部にも改良 を施す.三重恒温システムの設置のため、恒温ビニルハ ウス内に断熱材を敷き、その上にポンプを含む実験シス テム(断熱エリア)を設置する.図-7 に示すように、断熱 エリアの上面および側面を覆う素材については、温調器 からの温風の過剰充満を抑えるために断熱材ではなく、

木材を採用する.また、図-8 に示すように実験準備時 の作業の取り回しへの配慮、および温風循環の確保を目 的として、断熱エリア側面部の板と断熱エリア上部との 間に10 cmの隙間を確保し、三軸容器とセパレータを板 で区切る.これにより,実験システムの構成要素同士に よる温度への影響を抑えることができる.

また,配管の再設計を行い,各実験システム要素を直 線的に配置し,また,連結配管を用いることで,配管の 接続数を削減することで,新実験システムにおける配管 長を本実験システムより3割短縮させる.これによって, 配管からのガス漏れや液体の漏れといったシステムエラ ーのリスクを抑える.

さらに、図-9 に示すように、恒温ビニルハウス内の 温調器の位置を恒温ビニルハウスの隅から中央奥へと変 更する.これにより温調器からの温風が恒温ビニルハウ ス内に均一に拡散するようになり、実験システムの安定 した温度の維持管理が可能となる.

(5) 連続フローシステムの採用

従来の実験システムでは注入用・貯留用シリンジポン プを一台ずつ、それらへ補充・排出するためのバックア ップ用シリンジポンプを一台ずつ設置していた.長期間 の実験時に注入用シリンジポンプの容量がなくなると、 バックアップ用シリンジポンプからの補充作業が必要と なり、そのために実験を一旦停止させる必要が生じた. そこで新実験システムでは新たに連続フローシステムを 採用し、注入用ポンプ二台、および貯留用ポンプ一台を 用いて、CO2を実験システム内で循環させるシステムを 構築する.

今回導入した連続フローシステムは、図-10 に示すように、二台のシリンジポンプ(ISCO100D:容量 100 ml)を自動制御バルブによって連結し、制御ソフトでエアーバルブ内のバルブを操作することにより、CO₂を注入するポンプを自動で切り替え、連続的な CO₂注入実験が可能になるように設計する.エアーバルブは電子信号によって制御され、窒素ガスを送り込むことによってバルブの開閉を行う.図-11 にエアーバルブ内、およびエアーバルブを通じた実験システムの概略図を示す.シリンジポンプ A およびシリンジポンプ B は注入用ポンプ、シリンジポンジア C は背圧制御用ポンプである.シリンジポン



図-7 実験システム側面写真



図-8 実験システム内部写真



図-9 温調器



図-10 連続フローポンプ

プAからCO2を注入する際は、エアーバルブ内のバルブ A, およびバルブ D が開き, 同時にバルブ B およびバル ブ C が閉じられ,実験システム内に注入された CO2が三 軸容器内の試験体を透過し、シリンジポンプ C を経由 してシリンジポンプ B に貯留される経路が作られる (図-12). シリンジポンプ Aの容量が 25 %未満になる と、注入用ポンプがシリンジポンプ A からシリンジポ ンプ B に切り替わる. この時, エアーバルブ内ではバ ルブ B, およびバルブ C が開き, バルブ A およびバル ブ D が閉じられ、シリンジポンプ B からシリンジポン プAまでの CO2注入経路が作られる(図-13). この時, シリンジポンプ Bから実験システム内に注入された CO2 は、三軸容器内の試験体を透過し、シリンジポンプ C を経由してシリンジポンプ A に貯留される.以上の操 作を繰り返すことによって、システム内での CO2循環を 可能とし、シリンジポンプへの CO2補充を行わずに実験 装置を長時間稼働させることが可能となる.

3. 確認実験と考察

(1)実験条件

改良後の実験システムを用いて、CO2透過実験を実施 する.多様な岩石への対応性、および国内での CCS を 想定し、使用する試験体として、難透過性の長崎県産相 浦砂岩を用いる.図-14 に試験体を、表1 に実験条件を 示す.

表1 実験条件	
試験体	相浦砂岩
寸法	ϕ 5. 0 cm \times 10. 0 cm
流量	10 μl/min
温度	40 °C
初期間隙圧	10 MPa
拘束圧	20 MPa







図-13 シリンジポンプBからの注入



図-14 試験体

(2) 試験体作成

岩石試験体を相浦砂岩のブロックからボール盤により 所定の直径の円柱状に切り出す.切り出した試験体は、 横フライス盤により所定の高さにカットし、さらに平面 研削盤により上下端面を成形する.端面の平行度は±0. 01 mm 以内とする.コアリングを行った試験体は、純水 で飽和させたのちに、上下端面を PEEK 樹脂のエンドピ ースで挟み込み、側面からの CO2漏洩を防ぐために試験 体側面をサラン樹脂およびセメダインで被覆する.(図-15)

(3) 実験手順

図-16 に改良後の実験システムの概略図を示す.図-17 に示すように、三軸容器内に作成した試験体を組み込み、 配管を接続する.透水試験終了後、上流側、下流側それ ぞれのシリンジポンプ A, B, C を含む配管を乾燥させ るため、三軸容器近傍のバルブを閉じ、三軸容器内の試 験体を分断する.その際、三軸容器内の試験体には 10 MPaの間隙圧を残し、純水での飽和状態にする.

その後、恒温室の温度を 25 ℃に設定し、液体状態の CO₂をシリンジポンプ A、B、C に充填する. CO₂の充填 が完了したら、液体 CO₂を超臨界 CO₂へ相変化させるた め、各シリンジポンプ内の設定圧力を定圧モードで 10 MPa に設定し、間隙圧および背圧を 10 MPa まで上昇さ せる.

その後,温調器を稼働させ,恒温ビニルハウス内の温 度を 40 ℃に設定する.また,恒温循環水槽を稼働させ, シリンジポンプ,および配管内の温度を 40 ℃に設定す る.温度の上昇を実験システム全体に行き渡らせるため, 温調器および恒温循環水槽を作動させてから注入実験の 開始まで一日ほど時間をおく.

注入実験の開始にあたり、上流側のシリンジポンプA, Bをポンプ制御装置を用いて連結モードに設定し、定流 量モードに設定する.背圧制御用のシリンジポンプ C は定圧モードに設定し、背圧は 10 MPa とする.圧力計 により上流側・下流側の圧力を測定し、試験体両端間の 差圧を測定する.また、恒温ビニルハウス内、三軸容器 内,配管内に接続された熱電対を利用して、CO2透過実験 中の実験システムの温度変化も測定する.測定したデー タは恒温室の外に設置されたデータロガーに集計され、 USBポートを用いて計測用パソコンに記録される.

(4)実験結果および考察

図-18 に CO透過実験中のシリンジポンプ A およびシリ ンジポンプ B の流量変化を示す. 注入開始後 130時間ま ではシリンジポンプ B の流量が 10 µl/min を示し,シリ ンジポンプ B の容量が減ると連続フローシステムによ り注入ポンプの変更が起こり,続いてシリンジポンプ A が 10 µl/min で注入を行っているのが確認できた. 注入 を行っていない方のポンプは, 圧力の平衡を保つために







図-16 実験システム概略図



図-17 三軸容器への試験体の接続

流量を上下させていると推測される.この結果より,連続フローシステムを用いて継続的に実験システム内に CO2を注入し続けていることが確認できた.

また、図-19 に実験システム内および三軸容器内の温度 変化を示す.注入開始後約二時間で実験システム内温度, 三軸容器内温度ともにそれぞれ 38.7 ℃, 39.3 ℃で一定と なり、実験中の温度変化は測定限界値である±0.1℃以 内に抑えることができた.この結果より、実験中の実験 システム内の温度を一定に保つことができ、地下深部 条件のより精密な再現が可能となった.

図-20 に実験中の三軸容器上流側と下流側との差圧の 変化を示す.1度目の注入と2度目の注入の間隔は24時 間空け,差圧が定常状態に戻ったことを確認した後に2 度目の注入を開始した.1度目の差圧推移の結果より, 差圧が上昇を開始し,一旦定常状態となり,再び差圧が 上昇しピーク値を示した後に減少を始め,減少値が緩や かになる4段階の差圧変化を確認することができた.先 行研究²より,差圧が上昇している区間は CO₂の流路を 形成する過程であり,ピーク値に達することによって下 流側への流路が試験体上端へと到達し,差圧が減少する 区間では水と CO₂が断続的に排出される過程ではないか と推測されている.

さらに、2度目の注入試験では1度目よりも早く差圧 が減少し、かつピーク値が低いことで、2度目の注入試 験で注入された CO₂は1度目の注入試験で形成された流 路を通り、その流路が拡幅されたのではないかと考えら れる.また、ともに差圧減少過程において、差圧の減少 が続いていることも確認できる.このことから、流路の 形成は完了しておらず、差圧が定常状態となるのにはよ り長時間の計測が必要であると考えられる.また、流路 の形成が完了した場合、再度注入を行っても差圧の上昇 が定常値に留まり、1度目、2度目の注入試験結果とは 異なる差圧変化を示すと考えられる.

4. おわりに

本研究では、CO2透過実験において、地下深部条件の 温度圧力条件の正確な再現を目標とした実験システム開 発のために、従来の実験システムの改良に取り組んだ. その結果、圧力容器内の温度条件において、実験中の温 度変化を測定限界値まで抑えることができた.また,連 続フローシステムの動作を確認し、一週間以上の CO2透 過実験でも、ポンプへの補充をすることなく継続的な実 験が可能となった. 今後は更なる長期的な経過観察を 行い、差圧の収束値を計測し、さらに3度目の注入試験 を行うことによって、実験システムの安定性を検証して いく予定である.また、今後弾性波などの計測装置を接 続して、システムの確認を行う予定である.

参考文献

- Hiroyuki Honda : Measurement of electrical impedance and P-wave velocity of a low permeable sandstone core during the displacement of saturated by CO₂ injection, *Energy Procedia*, volume 114, pp.4879-4885, 2017.
- 2) 今里光紀ほか:難透過性岩石中における CO透過の長期挙動に関する実験的研究,第 38 回西日本岩盤工学シンポジウム論文集, pp.1-4, 2017.





図-18 シリンジポンプ流量変化