

難透過性砂岩への超臨界 CO₂ 繰返し注入条件下における CO₂ 透過特性に関する研究

九州大学工学部 学生会員 ○八木 裕之 九州大学大学院 正会員 三谷 泰浩
九州大学大学院 正会員 本田 博之 九州大学大学院 正会員 谷口 寿俊
九州大学大学院 学生会員 舟津 薫輝

1. はじめに

地球温暖化の緩和策として、CO₂ 地中貯留が注目されている。CO₂ 地中貯留の主な貯留層は、上部にドーム状の不透水層（キャップロック）を持つ帯水層だが、日本では、ごく限られた地域にしか存在しない。そのため、キャップロックを必要としない帯水層への貯留が検討されており、その一例として、地下深部の難透過性砂岩への貯留が考案されている。難透過性砂岩は固結度が高く、間隙流体の移流速度が遅いため、CO₂ 貯留や固定に適しているが、注入圧が大きくなることから圧入性に劣るという特徴を有している。

CO₂ 地中貯留では、貯留層の圧力・温度条件より、注入された CO₂ は超臨界状態となることから、貯留層の間隙水に比べて低い粘性を示す。そのため、CO₂ が存在する領域に、再度注入された CO₂ は、CO₂ の既存領域を透過しやすい傾向がある。このことから、CO₂ の透過性が向上することが予想されるが、難透過性砂岩に対して CO₂ の定流量繰返し注入を実施した研究は少ない。

本研究では、難透過性砂岩への超臨界 CO₂ 定流量繰返し注入実験を行い、定流量繰返し注入された CO₂ の透過特性を実験的に明らかにする。

2. 超臨界 CO₂ 注入実験の条件および方法

試験体は、直径 5 cm、高さ 10 cm の円柱に成形した相浦砂岩（長崎県佐世保市相浦産）を用いる。試験体の空隙率は 11.4 %、単位体積重量は 2.37 g/cm³、透水係数は 9.12×10^{-9} cm/s である。

実験では、CO₂ 地中貯留の対象となる深度 800~1,200 m の圧力・温度条件（拘束圧 20 MPa、間隙圧 10 MPa、温度 40℃）を再現する。この条件下で注入される CO₂ は超臨界状態となる。図 1 に実験システム並びに試験体セットアップの概要を示す。試験体の初期状態は純水飽和とし、間隙圧を 10 MPa に設定する。また、P 波速度（V_p）より CO₂ 到達時間を測定するため、共振周波数 1.0 MHz の圧電素子を試験体側面に注入方向 2 cm 間隔で直交 2 対、4 断面に取り付ける。V_p 計測は、CO₂ 注入時のみ実施する。

CO₂ 注入では、CO₂ 注入用ポンプを定流量 0.01 mL/min、背圧制御用ポンプを定圧 10 MPa に設定し、試験体下端面

より CO₂ の注入を行う。繰返し注入は、試験体両端に生じる圧力差（差圧）の定常値が収束するまで実施する。実験後、再注入を行うまでは、CO₂ 注入用ポンプを定圧 10 MPa（背圧と同値にし、差圧を 0 kPa）に設定したまま、約 100 時間保持し、安定を確認したあと、定流量 0.01 mL/min で注入を再開する。

3. 実験結果

3. 1. 差圧の変化

差圧の時間変化を図 2 に示す。注入回数ごとの差圧（ピーク値および定常値）、ダルシー則を用いて、差圧の定常値から算出した CO₂ 透過係数を表 1 に示す。

初回注入時、注入流量と上流配管の容積から、注入開始後 7 時間で CO₂ が試験体の下端（注入面）に達すると推測される。その後、CO₂ は試験体内を透過し、24 時間で試験体の上端に到達し、633 kPa のピーク値を示す。その後、差圧は下降に転じて 132 kPa で定常状態に至る。

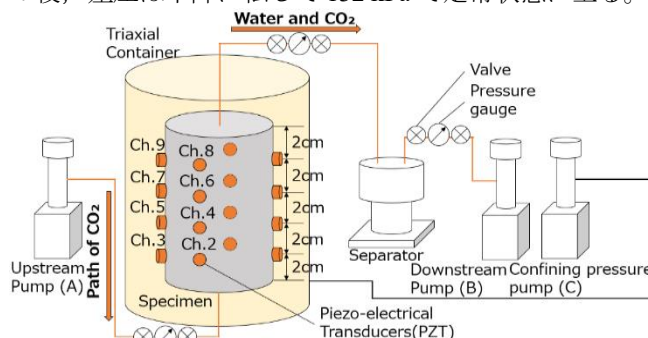


図 1 実験システム並びに試験体セットアップの概要

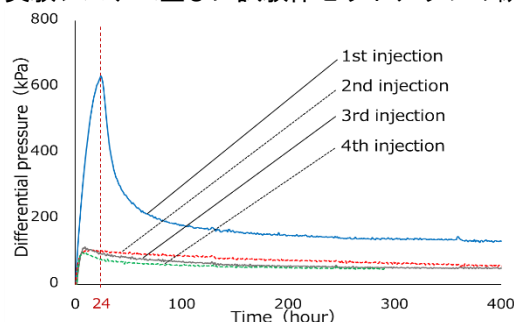


図 2 差圧の時間変化

表 1 CO₂ 注入回数ごとの差圧および CO₂ 透過係数

CO ₂ 注入回数	ピーク値 [kPa]	ピーク到達時刻 [hour]	定常値 [kPa]	CO ₂ 透過係数 [cm/s]
1	633	24	132	2.17×10^{-8}
2	106	13	58	4.93×10^{-8}
3	114	9	50	5.72×10^{-8}
4	97	9	50	5.72×10^{-8}

2回目注入は、初回注入と比較して、差圧の定常値とピーク到達時刻が減少し、3回目注入は、それらの値がさらに減少する。4回目注入では、3回目注入時とピーク到達時刻が一致し、差圧の定常値が 50 kPa で収束することを確認したため、注入を終了した。また、定常時の CO₂ 透過係数は、注入を重ねるごとに大きくなり、3, 4 回目注入では、変化は生じなかった。

3. 2. P 波速度 (V_p) の変化

注入された CO₂ の透過が進むことにより、V_p 計測領域の密度が下がり、V_p は減少する。初回注入時の V_p 減少開始時刻および V_p 減少に要する時間を表 2、試験体の CO₂ 透過に要する時間を図 3 に示す。

初回注入において、上述のように、試験体の下端に達する時刻が 7 時間であるため、Ch.2, 4, 6, 8 では、注入開始後 7~15 時間で、試験体下端から注入方向 2 cm の領域で、CO₂ 透過が生じているといえる。その後は、所要時間約 3 時間で注入方向に 2cm ずつ透過していく。Ch.3, 5, 7, 9 では、Ch.2, 4, 6, 8 と比べて、同じ高さの断面に到達するまでに約 1 時間の差が生じている。

2回目注入時、V_p は Ch.8, 9 のみ初回に比べて緩やかな減少を示し、その他の Ch. では変化が生じず、3, 4 回目注入時、V_p は全 Ch. で明確な変化は確認されなかった。

3. 3. CO₂ 透過挙動についての考察

CO₂ の初回注入時の V_p 変化の結果から、試験体の注入面に近い領域（試験体下部）では、CO₂ が多く透過し、試験体の排出面に近い領域（試験体上部）では、均等でない CO₂ 透過が生じると推測される。また、CO₂ が同じ高さの断面に到達するまでの時間差が生じることから、CO₂ の透過フロントが均等に進行していないと考えられる。

2回目注入は、初回注入と比較して、CO₂ 透過係数が大きくなり、Ch.8, 9 のみ V_p が緩やかな減少を示した。このことから、実験では、CO₂ がすべての空隙を透過するのではなく、残留水が試験体内に残存し、初回注入後の注入停止中に、Ch.8, 9 付近に残留する水が試験体下方に移行したと考えられる。この残留水の移行により、試験体上部で CO₂ 透過領域が拡大し、CO₂ の透過性が向上したと推測される。3回目注入は、2回目注入と比較して、CO₂ 透過係数が大きくなったことから、CO₂ 透過領域が拡大し、CO₂ の透過性が向上すると考えられる。4回目注入は、V_p 変化が見られず、3回目注入のピーク到達時刻、CO₂ 透過係数が一致することから、3回目注入時と同じ透過領域になったと推測される。

表 2 初回注入時の V_p 減少開始時刻および所要時間

Ch.	V _p 減少開始時刻 (hour)	所要時間 (hours)	Ch.	V _p 減少開始時刻 (hour)	所要時間 (hours)
2	15	8*	3	16	9*
4	18	3	5	18	2
6	20	2	7	20	2
8	23	3	9	23	3

* 差圧の結果より、下端到達時刻を 7 時間とした

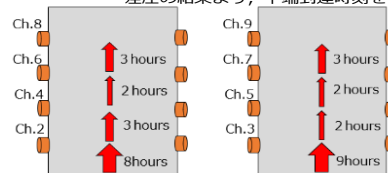


図 3 初回注入時の試験体への CO₂ 透過に要する時間

ここで、差圧の定常値 50 kPa で CO₂ 透過領域の変化がなくなる時点における透過領域内の空隙状態を推測する。この際、CO₂ 透過に要する毛細管圧力 P_c を求める(1)式を用いて、CO₂ が間隙水を押し出し、透過可能な空隙径 r を求める。

$$P_c = \frac{2\sigma}{r} \cos\theta \quad (1)$$

σ (mN/m) は界面張力、 θ (°) は接触角である。圧力 10 MPa、温度 40 °C における CO₂/塩水の界面張力は 27 mN/m、接触角は 34 °であり²⁾、今回はこれらを CO₂/水のパラメータとして代用する。これらより、差圧 50 kPa における r は 895 nm であった。この径以上の空隙すべてに CO₂ が透過したとすると、CO₂ 飽和度（試験体の全空隙を占める CO₂ の体積割合）は 46.7 %と推測される。一方で、実験終了時の CO₂ 飽和度の実験値（試験体から排出された水の容量より算出）は 40.0 %であった。この両値の差は、難透過性砂岩の空隙径分布が広く、空隙間が複雑なネットワークで構成されており、本来 CO₂ に満たされるべき径の空隙が CO₂ で満たされず、透過領域が安定したためと考えられる。

4. 結論

難透過性砂岩への超臨界 CO₂ 定流量繰返し注入実験の結果、以下のことが明らかとなった。

- CO₂ が注入された試験体内部では、CO₂ 注入停止時に、残留水が移行することから、試験体の排出面に近い領域で CO₂ 透過領域が拡大する。
- 注入回数を重ねるごとに、CO₂ 透過領域が拡大することで、CO₂ の透過性は向上し、4回の注入で透過領域は変化がなくなる。

謝辞：本研究は JSPS 科研費、JP17H01291 の助成を受けたものである。
参考文献

- 1) S. Tanaka, H. Koide, A. Sasagawa : Possibility of underground CO₂ sequestration in Japan, *Energy Convers. Mgmt.*, Vol.36, pp.527-530, 1995.
- 2) 川浦慶, 上田亮, 赤工浩平, 中野正則 : 極低浸透率岩石を対象としたスレッシュホールド圧力測定 : N₂ および CO₂ 圧入による効果の検証, 石油技術協会誌, 第 80 巻, 第 3 号, pp.171-180, 2015.