

# 二酸化炭素マイクロバブル地中貯留（CMS）における二酸化炭素地中挙動に関する研究

STUDY ON CO<sub>2</sub> IN-SITU BEHAVIOR IN CO<sub>2</sub> MICROBUBBLE STORAGE (CMS)

三好 悟<sup>1\*</sup>・稲葉 薫<sup>2</sup>・山浦 昌之<sup>3</sup>・三井田 英明<sup>4</sup>

Satoru Miyoshi<sup>1\*</sup>, Kaoru INABA<sup>2</sup>, Masayuki YAMAURA<sup>3</sup>, Hideaki Miida<sup>4</sup>

CO<sub>2</sub> micro bubble storage (CMS) is proposed as one of the technical alternatives for CCS. In CMS, micro bubble of CO<sub>2</sub> is dissolved in groundwater in a borehole and the groundwater is injected into aquifer. In this study, CO<sub>2</sub> behavior in CMS was numerically simulated. The results show that CO<sub>2</sub> migrates in the aquifer, the excess pore pressure generated by CO<sub>2</sub>-dissolved water injection is so small that rock around the injection well can be mechanically stable and CO<sub>2</sub> independent phase is not generated.

**Key Words:** carbon dioxide, CCS, CMS, micro bubble, storage, numerical simulation

## 1. はじめに

地下1000m程度あるいはそれ以上の深い地層に大規模にCO<sub>2</sub>を貯留する従来のCCS概念に対して、CO<sub>2</sub>発生源に近い地点で比較的浅部の地層にマイクロバブル化したCO<sub>2</sub>を貯留する技術が提案されている<sup>1)</sup>. Suzuki et al. (2012)<sup>2)</sup>は、汲み上げた地下水などにマイクロバブル化したCO<sub>2</sub>を飽和溶解させて注入するCO<sub>2</sub>マイクロバブル貯留（CMS）を提案し、国内の地層を想定して技術的、経済的実現性について検討した。本検討では、Suzuki et al. (2012)<sup>2)</sup>で提案される方式に基づいてCMSを操業した場合のCO<sub>2</sub>の挙動を数値シミュレーションにより求め、CO<sub>2</sub>挙動の観点からCMSによるCO<sub>2</sub>貯留の実現性について論じる。その際、操業条件のいくつかをパラメータとしてケーススタディを行い、それらの影響についても検討することとする。

## 2. CCSおよびCMSの概要

これまでに検討してきた二酸化炭素地中貯留（CCS）とCO<sub>2</sub>マイクロバブル貯留（CMS）の概要を以下に述べる。

キーワード：二酸化炭素、CCS、CMS、マイクロバブル、貯留、数値解析

<sup>1</sup>正会員 大林組 Obayashi Corporation, (E-mail: miyoshi.satoru@obayashi.co.jp)

<sup>2</sup>正会員 竹中工務店 Takenaka Corporation

<sup>3</sup>非会員 ダイヤコンサルタント Dia Consultant

<sup>4</sup>正会員 エンジニアリング協会 Engineering Advancement Association of Japan

### (1) CCS

二酸化炭素は比較的低温度、低圧力で超臨界状態になる。超臨界状態とは、液体と気体双方の性質をもつ物質の状態であり、気体に比べて密度は非常に大きく、液体に比べて粘性は小さい。CCSは、この超臨界状態のCO<sub>2</sub>を地中に注入し、大量のCO<sub>2</sub>を地中に貯留しようとする技術である。

CO<sub>2</sub>は、温度31.0°C以上、圧力7.8MPa以上で超臨界状態になることから、これらの温度、圧力条件を満たすことがCCSには原則的に必要である。また、CO<sub>2</sub>は超臨界状態において、同温、同圧の水より密度が小さく、地中に注入されたCO<sub>2</sub>は浮力により上昇して漏洩し生物圏に到達する可能性がある。そのため、CCSでは、通常、キャップ層やシール層などと呼ばれる、CO<sub>2</sub>が透過しにくい地層が貯留層の上部に位置する地質構造を必要とする。

### (2) CMS

CMSは、比較的浅部の帶水層などにCO<sub>2</sub>を貯留することを特徴とする。浅部のため超臨界状態ではなく、本検討では、CO<sub>2</sub>の飽和溶解水を注入する。数百m程度の注入深度を考慮した場合、間隙圧力が数MPaであり、CO<sub>2</sub>飽和水の質量濃度は数%程度である。これに対してCCS

で用いられる超臨界状態のCO<sub>2</sub>の密度は0.5g/cm<sup>3</sup>程度以上である。すなわち、CMSにおける地層の間隙体積あたりのCO<sub>2</sub>貯留質量は、CCSの数十分の1である。

費用の観点からは、Suzuki et al. (2012)<sup>2)</sup>によれば、比較的浅部の地層を用いることで、削孔費や調査費を低減することができ、窒素酸化物や硫黄酸化物を含まないガスを圧入することで、分離、回収の費用が不要になる。CO<sub>2</sub>を発生する事業所などの単位で、その近傍に施設を立地すれば、運送などの費用も大幅に低減することも可能である。

### 3. 方法

本研究では、CMSにおけるフィールド規模でのCO<sub>2</sub>の挙動を数値シミュレーションし、CMSのくつかの操業条件による、CO<sub>2</sub>の地中挙動への影響を調べる。数値シミュレーションでは、間隙圧とCO<sub>2</sub>濃度の分布、および、溶解CO<sub>2</sub>の気化によるガス相生成の可能性を含めて確認する。そのため、多相流を取り扱うことができるシミュレータとして、米国ローレンスバークレイ国立研究所で開発された、TOUGH2<sup>3)</sup>、および、ブラインとCO<sub>2</sub>の相分離特性や熱力学特性に対応したオプションであるECO2Nモジュール<sup>4)</sup>を用いる。

#### (1) CMSの基本操業方式

Suzuki et al. (2012)<sup>2)</sup>で提案されている操業方式を前提とする。CO<sub>2</sub>を圧入する帯水層は、地表からの深度300mから500mに存在する砂岩層とし、その上下には難透水性の泥質岩が存在するものとする(図-1)。また、CO<sub>2</sub>を圧入する鉛直井から水平方向に100m離れた4つの鉛直井により揚水して地下水流动を制御し、溶解したCO<sub>2</sub>を帯水層中に広く分散させることを考える。圧入および揚水量は、安定操業のためバランスさせることとする。ここでは、CO<sub>2</sub>溶解水としての圧入流量を7kg/secとし、4つの揚水井より均等に揚水することとする。

#### (2) 評価の観点

シミュレーションによる評価事項は次の3点とする。

##### a) CO<sub>2</sub>濃度分布

CO<sub>2</sub>が飽和もしくは飽和に近い濃度で揚水井に囲まれる領域に十分に行きわたるかどうかについて、溶解態CO<sub>2</sub>の濃度分布を確認する。

##### b) 間隙圧力分布

間隙圧が大きく増加すれば、有効応力の減少によって周辺の応力状態が変化してせん断破壊に至る場合を考えられる。閾値としての間隙圧力を決定することは難しい

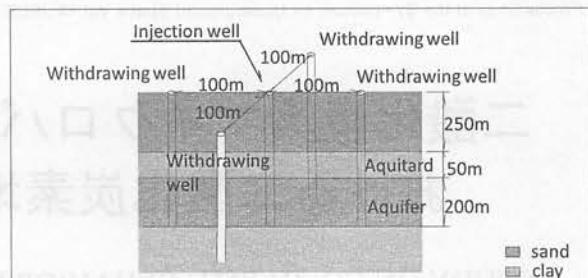


図-1 本検討におけるCMSの基本概念

が、たとえば、地下水位の変動程度(数十m)の範囲の間隙圧力変化であれば破壊には至らないと考えられるので、ここでは間隙圧力の分布を確認する。

##### c) 飽和度分布

気相の透過性は水相に比べ1000倍程度であり、水相との密度の違いから大きな浮力が働くので、気相化すればキャップ層を透過するCO<sub>2</sub>のフラックスは大きくなり、上方への漏出のリスクが高まる。CO<sub>2</sub>溶解地下水の密度は周辺の地下水の密度よりやや大きいことから、通常の地下水環境において自発的に上昇するフランクスは生じない。このことから、CMSにおいて、ガス化しない範囲でのCO<sub>2</sub>圧入は本質的に重要である。ここでは、ガス化の有無を飽和度の分布によって確認する。

#### (3) 数値シミュレータTOUGH2

溶解態のCO<sub>2</sub>の挙動は、移流分散、および分子拡散によって支配されるが、ここでは、CO<sub>2</sub>の気相化の有無を評価する目的から、上記に加え、相と相の間での物質のやり取りを含む多相流挙動をシミュレートすることができる数値シミュレータTOUGH2を使用する。

またECO2Nモジュールでは、水とCO<sub>2</sub>の相分離特性、および、混合状態における熱力学特性について、多くの室内実験によって得られたデータを基にしたモデルが実装されている。

#### (4) 前提条件

貯留対象層が深度300mから500m程度と浅層であることから、この地域の地下水は基本的に降水由来で、塩濃度が無視できるほど小さいことを前提とする。

また、CO<sub>2</sub>マイクロバブルを井戸内地下水に混合、溶解させるとき、飽和溶解度より過剰なCO<sub>2</sub>が与えられることが考えられるが、余剰なCO<sub>2</sub>は地表に戻り、気体のCO<sub>2</sub>は地層に注入されないことを前提とする。

#### (5) 数値解析条件

##### a) 離散化モデル

注入井および揚水井を含む水平(xy平面)500×500m、地表から深度(z軸)900mまでの領域を、x, y, z軸方向に

10×10×10mのグリッドに分割し、端部100m、地表から深度200mまで、および、下端部300mの分割幅は100mとした。注入井は、モデル中央部の隣接する4つのグリッドの下部で深度350mから450mに含まれるグリッドからの均等な湧き出し、揚水井は、隣接する2つのグリッドの下部で深度300mから500mに含まれるグリッドからの均等な吸出しとして表現した。

また、深度250mから300mはキャップ層として低透水性の地層、その下部には深度300mから500mまで高透水性の砂層がそれぞれ水平に存在するとして離散化した

(図-2) .

境界条件は、上部が大気圧(100kPa)および15°Cで一定とし、側部と下部はフラックス0の境界とする。初期条件は、温度は地表から地温勾配2.5°C/100m、圧力は静水圧勾配1MPa/100mで定め、CO<sub>2</sub>濃度は全グリッドについて0とした。圧入時のCO<sub>2</sub>の質量分率は、CO<sub>2</sub>分圧4MPa(≒深度400mにおける静水圧)における溶解度4.4%()よりも小さい4.0%とした。

### b) 物性值

天然ガス鉱業会・大陸棚石油開発協会(1992)11)の基礎試験等のデータを基に、我が国の平均的な砂岩層および泥質岩層の透過係数と間隙率を表-1のように設定した。

また、気相化を考慮することから、液相（水の優勢相）と気相（CO<sub>2</sub>の優勢相）による2相流特性を表-2のように設定する2). 砂岩層と泥質岩について同一の値を用いた。これは、キャピラリーバリアとしてのキャップ層の性能について保守的な設定である。

c) シミュレーションケース

シミュレーションケースは表-3 のように設定した。ケース1は、注入深度を350mから450mとして、キャップ層を設け、注入井と揚水井の距離を100mとする。これを標準ケースとして、注入深度を変えたケース2、キャップ層なし、すなわち、帶水層上部は砂岩層相当の物性値を与えたケース3、および、注入井と揚水井の距離を200mとしたケース4を設定する。ケース4では、1辺の長さが標準ケースの2倍の $20m \times 20m \times 20m$ のグリッドを主に用いた別の離散化モデルを作成した。

#### 4. 結果

各ケースの数値シミュレーション結果について、CO<sub>2</sub>が揚水井に到達した時点における、CO<sub>2</sub>の濃度、間隙水圧の分布、および、飽和度の分布を確認し、前記した評価の観点に基づいて評価を試みた。

### (1) ケース1

揚水井にCO<sub>2</sub>が到達した注入開始4年後におけるCO<sub>2</sub>質量濃度4%の等値面図に深度400mにおける等值線図を重ねたものを図-3に示す。図-3から、注入濃度に等しい濃度(4%)の領域が、揚水井に囲まれた範囲に広がり、揚水井近辺では分散の影響によりCO<sub>2</sub>濃度が1%未満になっていることがわかる。また、注入井が配置された解析領域中央部を中心に、間隙圧力が周辺より大きくなっている。圧力の増分は200kPa程度であった。同時点でガス化が生じたグリッドは見られなかった。

## (2) ケース2

注入開始後4年におけるCO<sub>2</sub>の質量濃度4%の等値面と深度300mおよび500mにおける等値線図を図-4に示す。CO<sub>2</sub>溶解水が帶水層中を水平方向に移行しつつ、上部に向けてやや分散していることがわかる。ケース1と同様に、間隙水圧の増分は200kPa程度であり、ガス化は生じなかつた。

### (3) ケース3

注入開始4年後におけるCO<sub>2</sub>の質量濃度4%の等値面と深度300m, 400m, および500mにおける等值線図を図-5に示す。溶解CO<sub>2</sub>の分布はケース1と同様であるが、深度300mと500mの等值線図から、上下の層にやや分散していることがわかる。間隙水圧の増分は上の2つのケースと同様で200kPa程度であり、ガス化は生じなかつた。

#### (4) ケース4

揚水井にCO<sub>2</sub>が到達したのは注入開始6年後であった。他のケースと同様に間隙水圧の増分は200kPa程度で、ガス化は生じなかつた。

## 5. 結論

以上から、注入井における注入深度や井戸間隔に関わらず、注入されたCO<sub>2</sub>は、帶水層中において気相化せずに分散すること、そして、間隙圧力の増加は水頭でせいぜい数十mの範囲であり、問題にならない程度であることがわかった。

また、キャップ層がないケースにおいて、CO<sub>2</sub>の挙動は、標準ケースと同様であったが、注入箇所から周囲のどの方向にもほぼ均等に圧力勾配が生じる結果上方へのCO<sub>2</sub>溶解水のフラックスが生じていることがわかった。

キャップ層として有効な層がない箇所での操業は、注入期間や注入流量などを適切に選んで上方への到達をよくモニタリングするなど、環境条件に応じた操業方式を検討することが必要と考えられる。

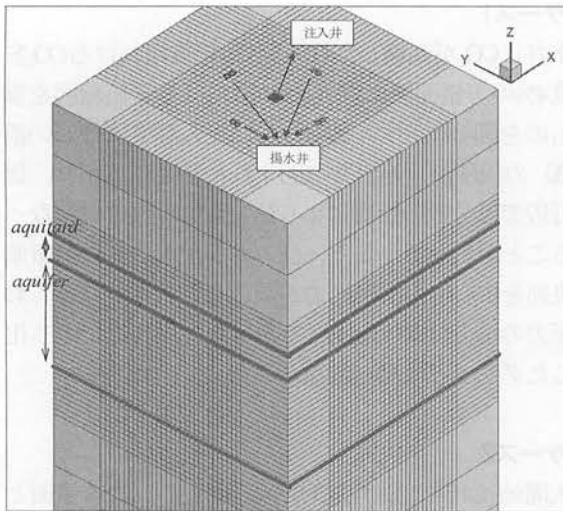


図-2 CMSの数値解析における対象領域の離散化モデル

表-1 貯留対象層（砂岩層）と加圧層（泥質岩層）の飽和透過係数と間隙率

	砂岩	泥質岩
飽和透過係数 ( $\text{m}^2$ )	$1.0 \times 10^{-13}$	$1.0 \times 10^{-16}$
間隙率 (-)	0.35	0.30

表-2 砂岩および泥質岩の2相流特性（相対透過係数、毛管圧）

相対透過係数		毛管圧	
van Genuchten function		van Genuchten-Mualem model	
砂岩	泥質岩	砂岩	泥質岩
$\lambda$	0.457	0.457	0.457
$S_f$	0.30	0.30	0.0
$S_b$	1.0	1.0	$1/P_0$
$S_{gr}$	0.05	0.05	$P_{max}$
			$S_b$
			0.999

表-3 シミュレーションケース

ケース	注入深度 (GL-m)	キャップ層の有無	注入井と揚水井の水平距離
1	350~450	あり	100m
2	400~500	あり	100m
3	350~450	なし	100m
4	350~450	あり	200m

謝辞：本稿はJKAの補助により平成22年度から平成23年度にかけて行われた研究成果の一部です。ここに謝意を表します。

## 文献

- Koide, H. and Xue Z.: Carbon microbubbles sequestration: A novel technology for stable underground emplacement of greenhouse gases into wide variety of saline aquifers, fractured rocks and tight reservoirs. Energy Procedia, 1,

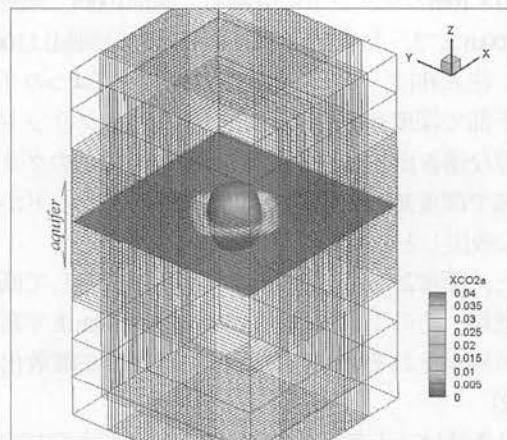


図-3 ケース1における4年後の溶解態CO<sub>2</sub>の濃度分布

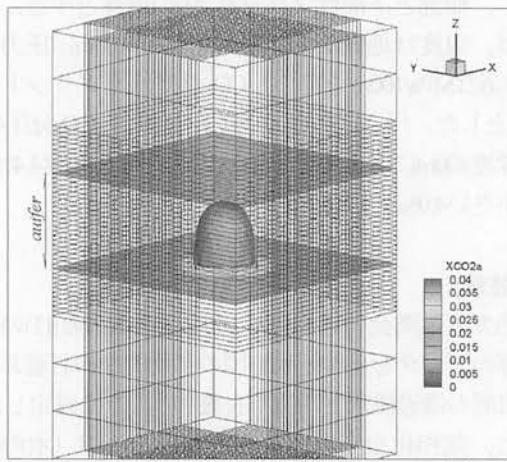


図-4 ケース2における4年後の溶解態CO<sub>2</sub>の濃度分布

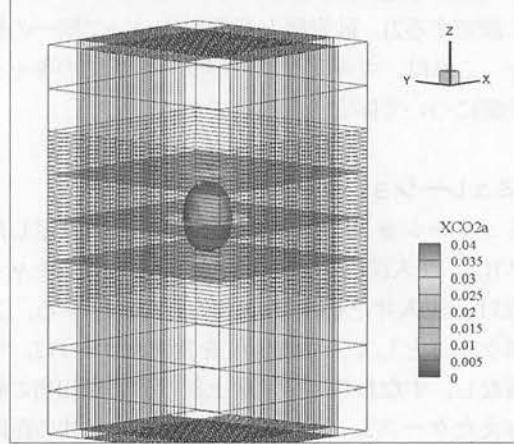


図-5 ケース3における4年後の溶解態CO<sub>2</sub>の濃度分布

3655-3662, 2009.

- 2) Suzuki et al.: Feasibility Study on CO<sub>2</sub> Micro Bubble Storage (CMS), Proceeding of the 11th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GhGT-11), in printing, 2012.
- 3) Pruess, K. and Garcia, J: Multiphase flow dynamics during CO<sub>2</sub> disposal into saline aquifers, Environmental Geology, 42, 282-295, 2002.
- 4) Pruess, K.: ECO2N: A TOUGH2 Fluid Property Module for Mixtures of Water, NaCl, and CO<sub>2</sub>, LBNL-57952, 2005.