長岡プロジェクトからみた二酸化炭素 地中貯留技術の現状と課題

薛 自 求** 松 岡 俊 文**

Lessons from the First Japanese Pilot Project on Saline Aquifer CO₂ Storage

Ziqiu XUE** and Toshifumi MATSUOKA**

Abstract

Several key questions need to be answered when CO₂ geological storage is to be undertaken worldwide. How should CO₂ be stored underground? Can trapping be assumed in saline formations and can CO₂ be retained for long periods safely in the subsurface? The first Japanese pilot-scale CO₂ sequestration project in Nagaoka was undertaken to provide answers to these questions. The injection site is located at the Minami-Nagaoka gas field in Nagaoka City, 200 km north of Tokyo. Supercritical CO₂ was injected into an onshore saline aquifer at a depth of 1,100 m. CO₂ was injected at a rate of 20 to 40 tonnes per day over an 18-month period, with a cumulative amount of 10,400 tonnes. A series of monitoring activities, which consisted of time-lapse well logging, crosswell seismic tomography, 3D seismic survey and formation fluid sampling, was carried out successfully to monitor CO₂ movement in the sandstone reservoir. This paper presents an overview of the results obtained from both field and laboratory studies to examine the spatial-time distribution of CO₂ and various trapping mechanisms in the reservoir. CO₂ breakthrough at two of the three observation wells was clearly identified by changes in resistivity, sonic P-wave velocity and neutron porosity from time-lapse well logging. Each velocity difference tomogram obtained by crosswell seismic tomography showed a striking anomaly area around the injection well. As the amount of injected CO₂ increased, the low-velocity zone expanded preferentially along the formation up-dip direction during the first two monitoring surveys and less change around the CO₂-bearing zone could be confirmed from the following surveys. Unfortunately there was no significant change in 3D seismic results due to CO₂ injection. The pilot-scale project demonstrated that CO₂ can be injected into a deep saline aquifer without adverse health, safety or environmental effects. The Nagaoka project also provides unique data to develop economically viable, environmentally effective options for reducing carbon emissions in Japan.

Key words : carbon dioxide, saline aquifer, well logging, crosswell seismic tomography, trapping mechanism

キーワード : 二酸化炭素, 塩水性帯水層, 物理検層, 坑井間弾性波トモグラフィ, トラップメカニズム

* 財団法人地球環境産業技術研究機構 CO₂ 貯留研究グループ

** 京都大学大学院工学研究科社会基盤工学専攻

+ 現所属: 京都大学大学院工学研究科社会基盤工学専攻

* CO₂ Sequestration Research Group, Research Institute of Innovative Technology for the Earth

** Department of Civil and Earth Resources Engineering, Kyoto University

+ Present address: Department of Civil and Earth Resources Engineering, Kyoto University

I. はじめに

二酸化炭素 (CO₂) 地中貯留は、再生可能エネルギーの利用、燃料消費効率の改善および燃料転換といった他の緩和策とともに、効果的な地球温暖化対策技術として注目されている。70 年代後半から米国やカナダで盛んに行われてきた CO₂-EOR (Enhanced Oil Recovery) による石油増進回収法が CO₂ 地中貯留の基礎となっている。CO₂-EOR は生産性が低下した油田に CO₂ を圧入し、石油の粘性を低下させて増進回収をはかる手法で、CO₂ 圧入から貯留層モニタリングまで多くの関連技術が地中貯留に適用可能である。このため、現在商業規模の CO₂ 貯留サイトである Sleipner (ノルウェー)、Weyburn (カナダ) および In Salah (アルジェリア) がともに大手石油企業によって操業されている (IPCC, 2005)。新技術の導入は社会に広く受け入れてもらうこと (社会的受容性) が重要で、地中貯留では長期間にわたって安全に CO₂ を貯留できることが求められている。地中貯留の長期安全性を確保するためには、地下深部に圧入された CO₂ の挙動を把握する必要がある。このため、現在操業中の大規模地中貯留のほかに、地中の CO₂ 挙動を詳しく観測するための研究ベースの圧入プロジェクトも行われている (Hovorka *et al.*, 2005; 棚瀬ほか, 2008; Sharma *et al.*, 2008)。このような取り組みは CO₂ 地中貯留が社会的受容を得るために重要な役割をもつ。

日本初の CO₂ 圧入実証試験は、平成 12 年度より新潟県南長岡ガス田の帝国石油株式会社の岩野原基地で行われた (長岡プロジェクト)。経済産業省の補助金を受けて、地球環境産業技術研究機構 (RITE) がエンジニアリング振興協会 (ENAA) の協力を得ながら、計 10,400 トンの CO₂ を地下約 1,100 m の帯水層に圧入し、地質条件が複雑な日本でも CO₂ 地中貯留が可能であることを示した。大規模 CO₂ 貯留が行われているノルウェー沖合の Sleipner は海域の帯水層貯留サイトであるため、CO₂ 挙動の把握に関する詳しい研究は困難であるが、長岡プロジェクトでは陸域帯水層貯留

の利点を生かした綿密な CO₂ 挙動モニタリングが行われた。CO₂ 圧入による貯留層の圧力・温度の変化や微小地震の常時観測に加え、観測井を利用した物理検層と坑井間弾性波トモグラフィが定期的の実施された。とくに物理検層では圧入された CO₂ が観測井に到達した時期を捉えることにより、CO₂ 長期挙動予測に欠かせない地質モデルのキャリブレーションに反映できる高精度のデータが得られた。また、地下深部の帯水層に圧入された CO₂ の分布について、物理検層で得られた坑井近傍の情報のほかに、坑井間弾性波トモグラフィによる面 (2 次元) 的情報、反射法地震波探査による空間 (3 次元) 的情報も取得された。また、物理検層と坑井間弾性波トモグラフィは、世界ではじめて CO₂ 圧入中だけでなく圧入後も実施されており、地中貯留の安全性評価に関する貴重な現場データが得られた。本稿では長岡プロジェクトの研究成果を紹介するとともに、日本の実情に適した地中貯留技術開発の現状と課題について述べる。

II. CO₂ 貯留層の選定と観測井の配置

1) 実証試験サイトの概要

CO₂ 圧入実証試験サイトは地下の状況が良く調査されている国内の油ガス田地域より選定された。主な選定条件は、①シール性が高く、連続性のあるキャップロックが存在すること、②貯留層の深度が 800 m ~ 1,200 m 程度、③貯留層の有効層厚が 10 m 以上、かつ連続性があること、④地層傾斜が緩やかであること、⑤圧入サイト周辺 1.5 km² の範囲内には断層等が存在しないことである。その結果、複数の有力な候補地点の中から、新潟県南長岡ガス田の帝国石油株式会社の岩野原基地が選ばれた (棚瀬ほか, 2008)。

岩野原基地は長岡市中心から約 9 km の信濃川支流となる洩海川左岸に位置する (図 1)。この付近には標高 200 m ~ 300 m の西山丘陵が広がり、西山層、灰爪層、魚沼層、段丘堆積物、沖積層が広く分布している (三戸ほか, 2008)。これらの地層は北北東-南南西方向を軸とする顕著な褶曲構造を形成し、背斜構造部分は石油や天然ガ

スの重要なトラップ（集積構造）となっている。このように、すでに流体を閉じ込めている背斜構造の帯水層は、地中貯留の長期安全性が期待できるため、社会的受容を得やすい。岩野原基地周辺の既存坑井の検層データおよび既往地震探査結果が検討された結果、地下約 1,100 m の灰爪層の砂岩卓越部（Ic 層）が CO₂ 圧入対象層として有望と判断された。この貯留層上位には灰爪層の泥岩卓越部が分布しており、砂岩卓越部に圧入された CO₂ を封じ込むキャップロック（帽岩）として機能することが期待できる。なお、岩野原基地では地下約 4,700 m より天然ガスを生産しているが、CO₂ 貯留層と天然ガス鉱床とは十分に距離が離れているため、CO₂ 圧入によるガス採掘への影響はなく、ガス採掘による CO₂ 貯留への影響もないと考えられる。

2) 圧入井の掘削と貯留層深度の決定

圧入井（IW-1）は岩野原基地内に垂直坑井として掘削された。貯留層とキャップロック層の基本物性を把握するため、坑井掘削中スポット的にコア試料を採取した。既存坑井間の層序対比により、貯留層およびキャップロック層が連続して広がっていることがわかった。貯留層に選定された灰爪層は 1,100 m 付近から 60 m の層厚で現れ、岩相の相違から大きく 5 つのゾーン（Zone 1 ～ Zone 5）に分けられる。各ゾーンの基本物性はすでに調べられている（棚瀬ほか, 2008）。以下では主な岩相とその特徴について述べる。

（1）Zone 1：石灰質砂岩を主体。暗灰色～オリブ色を呈し、貝殻片を含む。比較的固結度が高く、堅硬で緻密な岩層。

（2）Zone 2：極細粒～細粒砂岩を主とし、一部は中粒砂岩。層厚が 20 cm 以下の泥岩および礫岩を挟在。

（3）Zone 3：細礫岩および砂岩を主体。泥岩の偽礫や貝殻片を含む。下部には垂円礫からなる礫岩層が挟在。

（4）Zone 4：凝灰質砂岩および極細粒砂岩が主体。シルト岩の薄層を挟在。砂岩は暗灰色～明灰色を呈するが、シルト岩は淡黄褐色を呈する。

（5）Zone 5：シルト岩質砂岩層。石灰質で灰

色～暗灰色を呈し、泥岩の偽礫および貝殻片をわずかに含む。

上記の貯留層への CO₂ 圧入性（injectivity）を評価するために、ガスリフト法による揚水試験が実施された（君島・佐藤, 2008）。試験目的は圧入対象層の浸透率および可能な CO₂ 圧入レートを推定することである。試験前にあらかじめ坑内を高濃度の KCl ブライン（塩水：Cl⁻濃度 60,000 ppm）で満たした。このため、揚水開始直後は坑内を充填していた KCl ブラインが戻ってくるが、揚水が進むにつれ、Cl⁻濃度に変化が生じる。Cl⁻濃度の低下は貯留層からの流体流入量の増加を示し、Cl⁻濃度がある平衡状態に達したことを確認して揚水試験は終了する。貯留層の Zone 3 から Zone 5 までの区間、と Zone 2 から Zone 5 までの区間に対してそれぞれ揚水試験が行われ、揚水作業終了時の流体の Cl⁻濃度は、それぞれ、5,500 ppm と 4,200 ppm であった。揚水試験後の坑底圧力の経時変化（buildup）の解析により、地層の浸透率などが評価できる（Horne, 1995）。なお、揚水試験で汲み上げられた地層水の組成等については、本特集の三戸ほか（2008）に掲載されている。

図 2 に圧力解析結果の一例を示す。図の横軸は揚水停止後の経過時間、縦軸は揚水停止後坑内（約 1,080 m）の圧力上昇量 dp （○）およびその微分 dp' （□）をそれぞれ示している。実線および破線は、均質な貯留層モデルによる数値シミュレーションの理論解である（君島・佐藤, 2008）。圧力上昇量 dp の傾きの経時変化に断層や不均質箇所が存在を示唆する圧力変化がみられないことから、貯留層が比較的均質であることが確認された。また、圧力解析の結果より、灰爪層の Zone 2 の浸透率は約 7 milidarcy（1 darcy=0.986 × 10⁻¹² m²）と推定されたほか、可能な最大 CO₂ 圧入レートは約 20 トン/日であることも明らかになった。長岡プロジェクトは圧入実証試験期間が限られており、高浸透性の圧入対象層が望ましいことから、最終的には層厚約 12 m の Zone 2 が圧入対象区間に選定された。

図 1 長岡 CO₂ 圧入実証試験サイトおよび地質構造の概念図。

Fig.1 Location and simplified geological structure of the CO₂ injection site at Nagaoka City, Niigata Prefecture.

図 2 圧入井の揚水試験後に観測された圧力回復曲線と理論解との比較 (君島・佐藤, 2008; 1 MPa = 6.895×10^{-3} psi).

Fig. 2 Comparison of calculated and observed pressure profile after the pumping test at the injection well (after Kimijima and Sato, 2008).

3) CO₂ の圧入圧と圧入状況調査

貯留層 Zone 2 の浸透率が小さいことから、CO₂ 圧入による坑井近傍の異常な圧力増加を避

けるために、KCl ブラインと超臨界 CO₂ を用いたステップレートテスト (step rate test) をそれぞれ実施した。その結果、圧入井坑底の最大圧

力が 18.6 MPa 以下であれば地層を破壊しないことが確認できた (君島・佐藤, 2008)。地層の破壊圧 (fracture pressure) を推定するために、油ガス田開発分野ではこのようなステップレートテストがよく実施される。

圧入井では穿孔区間 (1,093 m ~ 1,105 m) の深度方向における貯留層への CO₂ 流入状況を把握するために、スピナー流速計を用いた測定試験 (スピナーテスト) が実施された。スピナー流速計 (spinner flowmeter) は、スピナー、密度計、圧力計および温度計を備えている。坑内流体の流速や流量は測定器のスピナー回転数をもとに求めることができる (Dake, 1995)。所定深度に測定器を停止させて測定する定点 (Stationary) 観測法では、圧入井の穿孔区間における坑内の超臨界 CO₂ の密度と圧力がほぼ一定であることがわかった。スピナーの回転数から CO₂ 流量を算出して圧入寄与率 (圧入レート全体を占める割合) を求めることができる。図 3 はスピナーの回転数と圧入寄与率を示している。深度 1,094 m ~ 1,096 m と 1,098 m ~ 1,102 m の 2 区間の圧入寄与率が高く、とくに 1,098 m ~ 1,102 m の区間では全圧入量の約 70 % を占めている。スピナーテストの結果をもとに、CO₂ 挙動シミュレーションでは Zone 2 を 2 つの区間に細分化し、CO₂ 分布予測の精度を向上することができた (大熊, 2008)。図 4 は圧入期間中の CO₂ 圧入レートと圧入井の坑底圧力の経時変化を示している。CO₂ 圧入レートを 20 トン/日から 40 トン/日に上げても、圧入井の坑底圧力は地層を破壊するとみられる管理値 (圧入圧力の制御基準値) 18.6 MPa を超えることはなかった。また、圧入井から約 60 m 離れた観測井 OB-4 で測定された貯留層の圧力変化も、CO₂ 圧入が安全に行われたことを示唆している。

4) 観測井の掘削と坑井仕上げ

CO₂ の広がり (CO₂-bearing zone) を CO₂ 到達 (breakthrough) による検層結果の変化によって捉えるため、圧入井 (IW-1) の周囲に 3 本の観測井 (OB-2, OB-3, OB-4) が掘削された。敷地の制約等により、3 本の観測井はすべて傾斜

図 3 深度方向のスピナー回転数と CO₂ 圧入寄与率の分布 (君島・佐藤, 2008)。

Fig. 3 Spinner rotation and estimated CO₂ injection profile from the spinner survey (after Kimijima and Sato, 2008).

掘りとなった。図 5 は貯留層深度における坑井の水平位置関係を示す。観測井 OB-2 と OB-4 を結ぶ直線は圧入井を含み、地層が東南東に約 15° 傾斜しているので、観測井 OB-2 と OB-4 は圧入井に対して、それぞれダウンディップ (down-dip) とアップディップ (up-dip) 方向に位置する。超臨界 CO₂ の密度が地層水より小さく、地層の傾斜方向 (up-dip) に沿って移動すると予想されるため、両観測井の位置は CO₂ の広がりを捉えるのに都合がよい。また、CO₂ の広がりが 3 本の坑井 (IW-1, OB-2, OB-4) が作る直線から離れた観測井 OB-3 でも観測できる。さらに、観測井 OB-2 と OB-3 の間では弾性波速度の異常領域 (速度低下域) を調べるための坑井間弾性波トモグラフィ測定が実施され、圧入された CO₂ の挙動や貯留層内の CO₂ の分布を 2 次元断面上で把握できる。なお、貯留層の弾性波 (P 波) 速度が約 2.5 km/s と遅く、波動の減衰が大きいことから、観測井 OB-2 と OB-3 の坑間距離は 160 m とした。

各観測井では物理検層 (音波、比抵抗、中性子)

図 4 (a) 圧入井 IW-1 および観測井 OB-4 で測定された CO₂ 圧入期間中および圧入後地層水圧の変化。
(b) CO₂ 圧入期間中の圧入レートおよび累積圧入量の経時変化。

Fig. 4 (a) Formation pressure changes measured at the injection well IW-1 and the observation well OB-4 during CO₂ injection and post injection period.
(b) CO₂ injection rate and total volume of injected CO₂ changes throughout the CO₂ injection period.

が定期的を実施されるため、坑井の仕上げには十分に配慮した。比抵抗検層を実施するために、各観測井の貯留層区間には非導電性の FRP (Fiber-Reinforced Plastic) ケーシングを設置した。ケー

シング設置後は細心の注意を払いながらセメンチングが行われた。ケーシングパイプとセメントおよびセメントと地層との密着状態を調べるために、CBL (Cement Bond Log) 検層が実施された。

その結果、850 m 以深ではケーシングパイプ、ケーシングセメントおよび地層間との密着状態がともに良好であることがわかった。したがって、各観測井で得られた CO₂ 挙動モニタリングの検層結果はいずれも地層の状態変化によるものである。

III. CO₂ 挙動モニタリング

1) CO₂ 圧入

長岡実証試験サイトでは、2003 年 7 月 7 日より CO₂ 圧入を開始した。CO₂ は高純度の市販品であり、新潟市内より液体炭酸ガスの状態でタンクローリーによって圧入サイトまで輸送された。液体炭酸ガスは加温・加圧後、超臨界の状態で地下 1,100 m の帯水層に圧入された。温度と圧力が CO₂ の臨界点 (31℃, 7.4 MPa) を超える条件下で、CO₂ は高密度 (液相)・高圧縮性 (ガス相) という液相とガス相の特徴をあわせ持つ特殊な状態となる。圧入期間中、CO₂ 製造設備の定期点検や中越地震の影響による圧入停止があったものの、2005 年 1 月 11 日までに計 10,400 トンの CO₂ が圧入された。なお、CO₂ 圧入レートや累積圧入量の推移は図 4 に示す。

2) CO₂ モニタリング

帯水層に圧入された CO₂ は貯留層孔隙内の地層水を幾分押しよけながら、圧入井から周辺へ広がる。その際、貯留層中の地層水飽和率は減少し、CO₂ 飽和率は増大する。このような CO₂ と地層水との置換プロセスによって、貯留層を伝播する弾性波速度は低下し、比抵抗は増大する (Xue and Ohsumi, 2004; 窪田ほか, 2006)。長岡プロジェクトでは、このような物性変化を検出するための物理検層 (音波検層、比抵抗検層および中性子検層)、坑井間弾性波トモグラフィが定期的 to 実施されたほか、圧入サイト周辺地域 (2 km × 2 km) を対象とする反射法地震波探査も実施され、貯留層に圧入された CO₂ の挙動がモニタリングされた (薛・渡辺, 2008; 斎藤ほか, 2008; 酒井, 2008)。とくに、物理検層と坑井間弾性波トモグラフィは、世界でははじめてとなる圧入後のモニタリングも行われた。図 6 は試験期間中

の圧入量と圧入レートの変化と物理検層や弾性波トモグラフィの実施時点を、圧入後のモニタリングを含めてプロットしたものである。

3) 物理検層による CO₂ 挙動モニタリング

物理検層によって検出される比抵抗、音波 (P 波) 速度、中性子孔隙率の変化によって、圧入された CO₂ が観測井に到達したことを示す break-through 現象 (以降 CO₂ 到達と呼ぶ) が確認され、到達後の CO₂ 挙動もモニタリングされた。試験サイトでは、CO₂ 圧入開始後約 247 日経過した 2004 年 3 月 10 日の検層では、圧入井に最も近い観測井 OB-2 に CO₂ 到達を示す物性変化が確認された。また、観測井 OB-4 では 2004 年 6 月 14 日の物理検層時に CO₂ 到達による同様な物性変化が観測されたが、観測井 OB-3 では現在も CO₂ 到達を示唆する検層結果は得られていない (薛・渡辺, 2008)。以下では観測井 OB-2 で実施された各検層手法の結果およびその解釈について述べる。

3-1) 比抵抗検層とその結果

CO₂ 圧入に伴って、貯留層では高導電性の地層水が不導体の CO₂ によって置換され、地層の比抵抗が高くなることから、CO₂ 挙動をモニタリングできる。各観測井の貯留層区間には FRP ケーシングが設置されており、電磁誘導によってケーシング奥にある貯留層に誘導電流を流すインダクション検層で比抵抗を測定することが可能である。図 7 は観測井 OB-2 で得られた比抵抗検層結果を示す。第 14 回の比抵抗検層では、深度 1,116 m 付近に比抵抗の変化が観測された。CO₂ 到達によって、比抵抗は 5.02 Ωm から 5.56 Ωm へと約 10% 増大した。

図 7 の左枠にある太い青線は CO₂ 到達前の 13 回の検層で得られた比抵抗の平均値である。第 14 回以降の比抵抗検層結果は左枠で重ねて示した後、右枠には相対的な変化量を実施順に示している。第 17 回以降は深度 1,116 m を中心に比抵抗増大域が大きく成長したほか、深度 1,113 m ~ 1,114 m の間にも CO₂ の存在を示唆する比抵抗の増大が認められた。このような比抵抗増大域は、圧入井の坑井テストで確認された高浸透性の

図 5 長岡実証試験サイトにおける貯留層上部での圧入井と観測井の配置。

Fig. 5 Well configuration at the top reservoir level of the Nagaoka injection site.

図 6 物理検層と坑井間弾性波トモグラフィによる CO₂ 挙動モニタリングの実施スケジュールと圧入レートや累積圧入量との関係 (薛・渡辺, 2008). 小さい四角は物理検層の実施時期を示しており、緑色とピンク色はそれぞれ CO₂ 到達前と CO₂ 到達後を示す。星印は坑井間弾性波トモグラフィの実施時期を示す。

Fig. 6 Time-lapse well logging and crosswell seismic tomography program at the Nagaoka site. CO₂ breakthrough at the observation well OB-2 and OB-4 was detected at 14th and 17th logging, respectively. Small squares (Green: pre-breakthrough; Pink: post-breakthrough) and stars indicate runs for well logging and crosswell tomography, respectively (after Xue and Watanabe, 2008).

区間とよく対応しており、CO₂ 圧入終了後も広がっている。最終的には 2 つの増大域がつながり、深度方向に約 4 m (1,113 m ~ 1,117 m) にわたる高比抵抗領域が形成された。

3-2) 音波検層

音波検層では地層の弾性波速度 (P 波と S 波) が得られる。長岡実証試験サイトでは FRP ケーシング設置後に音波検層が繰り返し実施された。

CO₂が圧入されると、貯留層を伝播する弾性波速度は、孔隙中の地層水とCO₂の割合（二相流状態）や混合流体の特性（体積弾性率、密度）に影響されて変化するので、音波速度の変化によってCO₂挙動をモニタリングできる。図8は観測井OB-2で得られた音波検層の結果で、P波速度にはより明確な変化が観測された。P波速度はCO₂到達前の2.55 km/sから1.84 km/sに大きく低下し、その低下率は最大約28%に達した。音波検層は第16回の計測までは深度約1,115mを中心に幅約2mにわたってP波速度の低下域が現れたが、第17回以降は速度低下域が深度1,113mから1,118mまで広がった。CO₂圧入終了後（第24回検層以降）はP波速度の低下域の幅がやや小さくなったが、1,113m～1,118mの間に分布している。

3-3) 中性子検層

中性子検層は、中性子放射線源から地層へ高速中性子（first neutron）を放射し、高速中性子と地層構成物質の原子核との反応過程で生じる熱中性子（thermal neutron）強度を測定することにより、地層の孔隙率を推定する手法である。放射線源から放出された高速中性子は、地層中の水素原子と衝突したときのエネルギー損失が最も大きく、衝突で生じた熱中性子の量は水素濃度に比例すると考えられている。一般に、地層中の水素原子の大部分は孔隙を充填する間隙水の水分子に含まれるので、熱中性子の強度を測定すれば間隙水の量がわかり、地層の孔隙率を推定することができる。貯留層に圧入されたCO₂は水素原子を含む地層水を孔隙から追い出し、代わりに水素を含まないCO₂が入るため、熱中性子の放射強度が弱くなり、見かけ上の孔隙率が低下するため、CO₂挙動をモニタリングできる。

図9は観測井OB-2で得られた中性子検層の結果で、CO₂到達によって1,116m付近では見かけ上の中性子孔隙率が最大約10%減少している。ここでは中性子孔隙率の減少が、貯留層に含まれていた地層水が圧入されたCO₂によって置換されたと解釈できる。中性子検層で検出されたCO₂分布域は、音波検層の結果とほぼ一致する。

4) 坑井間弾性波トモグラフィによる速度異常域の検出

音波検層が観測井近傍の微小区間の速度を検出するのに対し、坑井間弾性波トモグラフィは複数の観測井の間の弾性波速度分布を2次元で推定する。長岡実証試験サイトでは、観測井OB-2、OB-3にそれぞれ発信機と受信機を設置し、圧入井を挟むこれらの坑井間の速度異常域（CO₂浸透によって生じた速度低下域）を検出した。速度異常域はCO₂の分布域を示し、2次元断面における異常域をもとに圧入されたCO₂の広がりを知ることができる。弾性波トモグラフィにはさまざまな手法があるが、長岡実証試験サイトでは同一データセットに対し、波線理論と波動理論に基づく解析手法をそれぞれ適用し、CO₂挙動モニタリング手法としての有効性を確認した（Saito *et al.*, 2006; 斎藤ほか, 2008; Spetzler *et al.*, 2008）。波線理論（ray theory）では弾性波の周波数が無限大、波長が無限小と近似し、弾性波の伝播には波線経路上の物性値しか影響しないと見なす。しかし、実際の観測に使用される弾性波の周波数はある帯域をもち、弾性波の伝播は波線経路上だけでなく、その周辺の物性値の影響も受ける。波線経路だけでなく、波動が影響を及ぼす空間的範囲も適切に考慮できるのが波動理論である。

図10は波線理論に基づく解析手法によって求めたモニタリング測定MS1～MS4の速度変化率トモグラムで、圧入ポイントを中心に速度変化域が確認できる（斎藤ほか, 2008）。しかし、これらのモニタリング測定ではCO₂圧入によるP波速度の低下率が約3.5%に過ぎず、音波検層やコア試料の測定結果に比べてはるかに小さい。坑井配置ジオメトリによって発生した偽像が走時差の配分を乱し、本来の速度低下率が小さくなってしまったことが主な要因と考えられる。この問題を解決するために、斎藤ほか（2008）は速度低下領域を制限する解析法（横田ほか, 2003）を採用し、偽像の消去と解析精度の向上をはかった。彼らは圧入前（ベースライン）測定を含む計6回のトモグラフィ測定より、走時の遅れが観測され

図 7 CO₂ 圧入期間中および圧入後の比抵抗検層結果。左枠の青線は CO₂ 到達前の 1-13 回の比抵抗検層結果の平均値を示している (薛・渡辺, 2008)。右側は 14 回以降の検層結果で、比抵抗値の変化領域が拡大している。

Fig. 7 Results of induction logging during CO₂ injection and post-injection period at the observation well OB-2. The blue line in the left panel indicates the average of the logging runs 1-13th (after Xue and Watanabe, 2008). Logging charts in the right panel show differences from the average of 1-13th data, indicating extension of the CO₂-bearing zone.

図 8 CO₂ 圧入期間中および圧入後の音波検層結果 (Vp)。左枠の青線は CO₂ 到達前の P 波速度の平均値を示している (薛・渡辺, 2008)。

Fig. 8 Results of sonic logging during CO₂ injection and post-injection period at the observation well OB-2. The blue line indicates the averages of P-wave velocity of runs 1-13 (after Xue and Watanabe, 2008).

図 9 CO₂ 圧入期間中および圧入後の中性子検層結果（中性子孔隙率）。左枠の青線は CO₂ 到達前の中性子孔隙率の平均値を示している（薛・渡辺, 2008）。

Fig. 9 Results of neutron logging during CO₂ injection and post-injection period at the observation well OB-2. The blue line indicates the averages of runs 1-13 (after Xue and Watanabe, 2008).

なかった波線経路を断面にプロットし、図 11 に示す速度低下があった「空白域」を求めた。この「空白域」よりやや広い範囲内のみ速度が低下するという制限をつけて再解析した結果、速度低下率は最大で約 13.4% となった。この結果は同一データセットに波動理論を適用した場合の速度低下率（18%）より 5% ほど小さい。波動理論の解析手法や解析結果については、Spetzler *et al.* (2008) に詳しく書かれている。

5) 反射法地震波探査による CO₂ 挙動モニタリング

地下深部の帯水層に圧入された CO₂ 挙動モニタリングの手法として、繰り返し地震波探査 (4D seismic survey) は、ノルウェー沖合の Sleipner やカナダの Weyburn プロジェクトでも実施されている (Li, 2003; Arts *et al.*, 2004)。これまでの石油や天然ガスの探査実績も考慮に入れると、モニタリング手法としての地震波探査の優位性はか

なり高いが、複雑な地質構造を対象とする場合は探査結果の解釈に困難が伴うことも予想される。Sleipner や Weyburn に比べて長岡サイトの貯留層の規模（特に厚み）は小さく、砂岩と泥岩が互層になっている場所も多い。長岡サイトでは物理検層や坑井間弾性波トモグラフィと並行して繰り返し地震波探査が実施され、日本の地中貯留サイトでの CO₂ 挙動モニタリングへの適用可能性が調べられた。

CO₂ 圧入前のベースライン測定は 2003 年 7 月に、CO₂ 終了後のモニタリング測定は 2005 年 7 月～8 月に、計 2 回の 3 次元反射法地震波探査が実施された (酒井, 2008)。しかし、長岡実証試験サイトでは周辺の公園や道路の利用制限が厳しく、測線や震源の配置が偏ってしまった。また、Sleipner や Weyburn に比べて、CO₂ 圧入量が少ないことから、トモグラフィでみたように CO₂ は貯留層に局在したため、CO₂ 圧入による

図 10 波線理論に基づく CO₂ 圧入期間中の坑井間弾性波トモグラフィ MS1～MS4 の解析結果 (斎藤ほか, 2008)。

Fig. 10 Velocity difference tomograms for monitoring surveys of MS1 to MS4 during the CO₂ injection period (after Saito *et al.*, 2008).

顕著な変化を示唆する反射断面が認められなかった。長岡実証試験サイトで実施された地震波探査の詳細については、酒井 (2008) の報告を参照されたい。

IV. CO₂ 貯留メカニズム

1) トラップメカニズムの概要

帯水層に圧入された CO₂ は図 12 に示すようなトラップメカニズムによって長期にわたり安全に貯留されると考えられている (IPCC, 2005)。た

だし、吸着 (Adsorption) は石炭層への CO₂ 固定の主なトラップメカニズムであり、ここでは議論の対象から除く。図 12 は各トラップメカニズムが完全に機能するまでの時間も示されているが、その詳細については十分にわかっていない。物理トラッピング (Physical trapping) は貯留層内の CO₂ を物理的に封じ込めるトラップメカニズムで、封じ込めの役割を果たす泥質岩層が貯留層の上部を覆うように分布する場合、この岩層はキャップロックとも呼ばれる。このような物理

図 11 速度低下域を限定した制限付きトモグラフィ解析のモデル図 (斎藤ほか, 2008)。

Fig.11 The zone constrained by velocity reduction in the tomographic reconstruction (after Saito *et al.*, 2008).

的な封じ込め機構に対し、 CO_2 が地層水に溶解したり、溶解した CO_2 が岩石鉱物との化学反応によって炭酸塩として固定されるのが溶解 (Dissolution) と鉱物化 (Mineralization) メカニズムである。長岡サイトでは CO_2 圧入前と圧入後にそれぞれ地層水が採取され、溶解と鉱物化のトラップメカニズムに関する検討が行われた (三戸ほか, 2008)。一方、残留 CO_2 トラッピング (Residual CO_2 trapping) は天然ガス生産過程でよく知られている残留ガストラップメカニズムと類似の現象である (Holtz, 2002)。地中貯留の場合、地層水と CO_2 との密度差に起因する浮力によって、 CO_2 が傾斜地層の上方へ移動する。このような CO_2 の移動に伴って地層水が浸入し、一部の CO_2 を孔隙内にトラップする。なお、各ト

図 12 帯水層への CO_2 圧入に伴う種々の貯留メカニズムの概念図 (IPCC, 2005)。

Fig. 12 Schematic showing the time evolution of various CO_2 storage mechanisms operating in deep saline formations, during and after injection (after IPCC, 2005).

ラップメカニズムの基本概念等については、本特集の別報（薛・中尾, 2008）を参照されたい。以下では長岡サイトのコア試料と多孔質砂岩試料を用いた室内実験の結果をもとに、物理トラッピングと残留 CO_2 トラッピングについて述べる。

2) 物理トラッピング

長岡サイトでの物理トラッピングを評価するため、観測井 OB-2 より得られたスポットコア（Zone 5, 石灰質シルト）を用いて、シール性に関する室内実験を行った。物理検層の結果からは、このコア試料の音波速度は圧入対象層である Zone 2 上位の高速度層 Zone 1（石灰質シルト）のそれとほぼ同じである。コア試料から直径 50 mm、長さ 100 mm の円柱試料を切り出し、上下端に圧電素子（PZT）を埋め込んだエンドキャップを取り付けた後、試料側面にシリコンゴムを塗布した。測定試料を高压容器にセットして、帯水層の温度と圧力を模した条件下でコア試料のシール性（閾値圧力: threshold pressure）を調べた。閾値圧力はシール性の評価指標として、油ガス田開発分野ではよく用いられている（Bear, 1972）。

CO_2 圧入対象層の温度と圧力はそれぞれ約 48℃ と 10.8 MPa であるが、塩水によるステンレス配管の腐食を防ぐため、閾値圧力測定実験では温度を 40℃ に設定した。測定試料の下端（BTM）より、人工地層水（塩分濃度と主なイオン組成が貯留層から採取された地層水とほぼ等しくなるよう調整された水）を注入しながら、試料上端（TOP）での圧力の変化（buildup）をモニタリングした。図 13 は注水期間中の試料上下端の圧力測定結果を示す。人工地層水の圧力は一定値を保ちながら 3 MPa から 15 MPa まで 4 段階に分けて上昇させた。注入開始約 13 日後にはじめて注入端の反対側の圧力に増加傾向が認められた。その時の注水圧は 15 MPa に達していた。その後、さらに約 20 日間にわたって同じ圧力で注水を継続したが、試料上端の圧力の増加は観測されなかった。測定試料の上端の圧力は 10.5 MPa となっており、上下端の圧力差は 4.5 MPa であった。興味深いことに、平衡状態に達した際の試料

上端の圧力は、コア試料が採取された貯留層の圧力（10.8 MPa）とほぼ一致した。

注水試験後、この測定試料に 2 回に分けて超臨界 CO_2 を注入した。1 回目の CO_2 注入実験では、測定試料上端の圧力（人工地層水圧）を 10.8 MPa に保持しつつ、試料下端に 13.2 MPa の一定圧力で超臨界 CO_2 を負荷した。図 14a は超臨界 CO_2 注入時に得られた試料上下端の圧力変化を示している。試料下端につけたエンドキャップに含まれる人工地層水への溶解によって、実験開始約 7 日までに超臨界 CO_2 の注入圧力が 13 MPa までわずかに減少した。しかし、その後は CO_2 注入圧の減少は認められなかった。また、試料上端の圧力（地層水圧）は 10.8 MPa のままでほとんど変化しなかった。実験終了時の試料上下端の圧力差は約 2.2 MPa であった。2 回目の超臨界 CO_2 注入実験では、試料下端の CO_2 注入圧が 14 MPa に設定され、試料上端の地層水圧は 10.8 MPa から 8 MPa に急激に減少させてから、試料上下端の圧力変化を測定した（図 14b）。測定開始約 17 日後までは、試料上端の地層水圧が約 10.2 MPa に大きく増加したが、その後はわずかな圧力増加が認められた。このような圧力変動は試料内部からの地層水の流出が原因と考えられる。しかし、圧力変動があっても、超臨界 CO_2 が試料下端へ浸透することはなかった。その根拠として、試料上下端を伝播する P 波速度がほとんど変化しなかったことが挙げられる（図 14c）。2 回目の超臨界 CO_2 注入実験では、試料上下端の圧力差が 3.5 MPa となっていた。これは CO_2 圧入によって貯留層内の圧力が初期の状態より 3.5 MPa 増加しても、石灰質シルトを主体とする Zone 1 への CO_2 の浸透が起これないと考えられる。弾性波トモグラフィの制限付き解析法では、 CO_2 分布域とされる「空白域」の上部を覆う Zone 1 は、弾性波の初動走時遅れが生じない領域と解釈されているが、石灰質シルトのコア試料を用いた室内実験の結果は、制限付き解析法での仮定の妥当性を示唆している。

3) 残留 CO_2 トラッピングについて

残留ガストラップは、天然ガスの生産過程で経

図 13 地下の圧力と温度条件下におけるコア試料への間隙水注入時に得られた圧力の経時変化。

Fig. 13 Pressure profile when injecting pore water into the drilled core under simulated pressure and temperature conditions.

験的に確認されている貯留層の空隙内での現象である (Holtz, 2002)。地中貯留における超臨界 CO_2 の残留ガストラップメカニズムを理解するために、X 線 CT 装置を用いて超臨界 CO_2 と間隙水との置換プロセスを可視化した。X 線 CT 装置は JOGMEC (独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構) 所有の東芝製 Aquilion 16 で、最少スライス幅は 0.5 mm、最少ピクセルサイズは 0.35 mm × 0.35 mm である。実験には長岡サイトの貯留層の浸透性に近い浸透性をもつ多胡砂岩 (群馬県産) を使用した。アルミ製のコアホルダーに多胡砂岩の円柱試料 (直径 50 mm、長さ 150 mm) を水平 (円柱試料の長軸方向) にセットし、3 wt% NaCl で飽和させてから円柱試料の端面より超臨界 CO_2 を注入した (排水: drainage)。超臨界 CO_2 注入時の温度と圧力はそれぞれ 40℃ と 10 MPa とした。 CO_2 注入実験後は同じ温度と圧力条件で再び 3 wt% NaCl を注入した (吸水: imbibition)。このような drainage (含水飽和状態の岩石に CO_2 を注入する過程) と imbibition (CO_2 注入後の岩石が水を吸収する過程) を経て、砂岩試料の孔隙内では残留 CO_2 ト

ラップが発生すると考えられている。

図 15 は含水飽和状態の多胡砂岩に超臨界 CO_2 を注入する排水過程 (drainage) で得られた測定試料の長軸方向における CO_2 の浸透挙動や分布状況を示している。図中の暖色系カラーの分布域は CO_2 浸透域を示しており、 S_g は CT 値より換算された CO_2 飽和率である。超臨界 CO_2 の注入量が測定試料の pore volume (PV) の 3.3 倍に達するまでは、 CO_2 注入レートを 0.1 cc/min に固定していた。その間、 CO_2 は測定試料の上部 (直径方向) に向かって浸透する傾向が認められる。その後、注入レートが段階的に上昇させるにつれ、 CO_2 は試料全体に広がる。超臨界 CO_2 の注入実験は累積注入量が pore volume の 24 倍に達するまで行われた。

超臨界 CO_2 注入後、5 wt% の NaI 造影剤を混合させた超臨界 CO_2 に飽和した溶解水 (3 wt% NaCl、以下では CO_2 溶解水と呼ぶ) を一定レート (0.2 cc/min) で再注入しながら、imbibition 過程の CT 撮影を行った。この時の温度と圧力条件は drainage 過程と同じように設定されており、試料長軸方向における CO_2 溶解水の浸透挙動は

図 14 超臨界 CO₂ 注入時の圧力および P 波速度の経時変化. (a) 1 回目の CO₂ 注入実験より得た圧力の経時変化, (b) 2 回目の CO₂ 注入実験より得た圧力の経時変化, (c) 2 回目の CO₂ 注入実験時の P 波速度の経時変化.

Fig. 14 Results of pressure and P-wave velocity changes when injecting supercritical CO₂ into the water-saturated core sample. (a) pressure changes during 1st CO₂ injection test, (b) pressure changes during 2nd CO₂ injection test, (c) P-wave velocity change during 2nd CO₂ injection test.

図 15 多胡砂岩への超臨界 CO₂ 注入過程で得られた X 線 CT のイメージ。
Sg: CO₂ 飽和率; Sw: 水飽和率

Fig. 15 X-ray CT images during drainage process in Tako sandstone.
Sg: CO₂ saturation; Sw: Water saturation.

図 16 多胡砂岩への吸水過程で得られた X 線 CT のイメージ。
Sg: CO₂ 飽和率; Sw: 水飽和率

Fig. 16 X-ray CT images during imbibition process in Tako sandstone.
Sg: CO₂ saturation; Sw: Water saturation

図 16 に示した。再注水試験の初期段階では CO₂ 溶解水がほぼ均一に浸透しており、累積注水量が pore volume の 12.8 倍に達しても、測定試料の孔隙には依然として超臨界 CO₂ が残留していることが CT 撮影結果より確認できる。また、累積注水量が pore volume の 17.9 倍の場合は、pore volume の 12.8 倍よりも、超臨界 CO₂ 飽和度が増加しているように見える。このように drainage と imbibition プロセスのヒステリシスとして、一部の超臨界 CO₂ が孔隙には残留ガスとしてトラップされていることがわかった。

V. ま と め

長岡実証試験サイトでは地下 1,100 m の塩水性帯水層に計 10,400 トンの CO₂ を圧入したが、陸域帯水層貯留としては世界初の圧入試験であった。坑井掘削から圧入終了まで、貯留層の性状把握や CO₂ 挙動モニタリングについては綿密な観測が行われた。それらの観測結果と採取されたボーリングコア試料を用いた室内実験により、圧入された CO₂ が安全に帯水層に貯留されていることが実証され、地質構造が複雑な日本でも地中貯留が可能であることが明確に示された。以下に長岡プロジェクトより得られた主な技術的知見を示す。

① 圧入された CO₂ が観測井に到達すると、物理検層では音波速度の低下や比抵抗の増大が観測された。とくに、音波速度 (V_p) は急激に低下することが確認でき、貯留層内の CO₂ 分布域の把握や地表浅部での CO₂ 漏洩の早期検出に有効な指標となる。

② 2 本の観測井を利用した坑井間弾性波トモグラフィによって、CO₂ 分布を 2 次元断面で可視化できた。ただし、従来の波線理論による解析では、CO₂ 圧入による P 波速度の低下率が約 3.5% に過ぎず、音波検層やコア試料の室内実験結果に比べてはるかに小さく、P 波速度の低下率が十分に再現できない。貯留層上部の地層に CO₂ が浸透しないような制限条件付き再解析の結果、P 波速度の低下率が最大で約 13.4% となった。この速度低下率は波動理論を適用したトモグラ

フィ解析結果とほぼ一致している。

③ コア試料を用いた室内実験により、貯留層上部の高速度層 (Zone 1: 石灰質シルト層) には超臨界 CO₂ が浸透しないことが確認できた。実験結果は波線理論によるトモグラフィ解析時の制限条件の妥当性を示している。コア試料を用いた室内実験は帯水層に圧入された CO₂ のトラップメカニズムを理解するのに役立つ。

④ 貯留層と類似の性質をもつ多胡砂岩を用いて、drainage (超臨界 CO₂ 注入) と imbibition (3 wt % NaCl ブライン注入) プロセスを X 線 CT 装置によって観察した結果、一部の超臨界 CO₂ が孔隙に残留ガスとしてトラップされていることが確認できた。

⑤ 反射法地震波探査による CO₂ 挙動モニタリングが実施されたが、長岡実証試験サイトでは計 10,400 トンの CO₂ 圧入による顕著な変化は認められなかった。海外の圧入サイトに比べ、長岡サイトでは CO₂ 圧入量が少なく、貯留層の規模も小さく地質構造も複雑であることが主な要因と考えられる。また、圧入サイト周辺の用地制限により、測線や発信点が偏った配置になったため、わずかな変化が検出できなかったことも要因の一つである。

今後国内での本格的な CO₂ 地中貯留を実現するためには、長岡プロジェクトの研究成果を踏まえた上で、CO₂ 分離回収から貯留までの一貫した実証試験によって、技術体系を早期に確立することが強く望まれる。

謝 辞

本研究は経済産業省の補助事業「二酸化炭素地中貯留技術研究開発」の成果の一部である。本事業の実施にあたっては、地球環境産業技術研究機構をはじめ、エンジニアリング振興協会、帝国石油等関係機関の多くの方にご協力をいただいた。また、本稿の完成にあたっては、土木研究所の稲崎富士氏、ダイヤコンサルタントの西澤 修氏および地学雑誌編集委員会のかたがたより貴重な意見をいただいた。ここに記して謝意を表します。

文 献

- Arts, R., Eiken, O., Chadwick, A., Zweigel, P., Van der Meer, B. and Kirby, G. (2004): Seismic monitoring at the Sleipner underground CO₂ storage site (North Sea). in *Geological Storage of Carbon Dioxide* edited by Baines, S.J. and Worden, R.H., *Geological Society, London, Special Publications*, **233**, 181-191.
- Bear, J. (1972): *Dynamics of Fluids in Porous Media*. Elsevier.
- Dake, L.P. (1995): *Fundamentals of Reservoir Engineering*. Elsevier.
- Holtz, M. (2002): Residual gas saturation to aquifer influx: A calculation method for 3-D computer reservoir model construction. *The SPE Gas Technology Symposium, Calgary, Alberta, Canada, 30 April-2 May*, SPE 75502.
- Horne, R. (1995): *Modern Well Test Analysis A Computer-Aided Approach*. Petroway Inc.
- Hovorka, S., Doughty, C., Sakurai, S. and Holtz, M. (2005): Frio brine pilot: Field validation of numerical simulation of CO₂ storage. *AAPG Annual Convention, Calgary, Alberta, Canada, June 19-24*.
- IPCC (2005): *Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage*. Cambridge University Press.
- 君島 晋・佐藤章吾 (2008): 二酸化炭素地中貯留実証試験での油層工学的諸物性の測定と評価. *Journal of the Mining and Material Processing Institute of Japan*, **124**, 61-67.
- 窪田健二・鈴木浩一・薛 自求 (2006): CO₂ 地中貯留における比抵抗及び自然電位モニタリングに関する実験的研究—岩石コア試料を用いた検討—. 電力中央研究所報告, No. N980503.
- Li, G. (2003): 4D seismic monitoring of CO₂ flood in thin fractured carbonate reservoir. *The Leading Edge*, **22**, 690-695.
- 三戸彩絵子・薛 自求・大隅多加志 (2008): 二酸化炭素地中貯留における地球化学反応特性について—長岡実証試験サイトの地層水分分析例—. *地学雑誌*, **117**, 753-767.
- 大熊 宏 (2008): 地下深部塩水層における二酸化炭素地中貯留のシミュレーション技術および長岡圧入実証試験への適用. *Journal of the Mining and Material Processing Institute of Japan*, **124**, 87-94.
- Saito, H., Nobuoka, D., Azuma, H., Xue, Z. and Tanase D. (2006): Time-lapse crosswell seismic tomography for monitoring injected CO₂ in an onshore aquifer, Nagaoka, Japan. *Butsuri-Tansa (Geophysical Exploration)*, **59**, 30-36.
- 斎藤秀樹・信岡 大・東 宏幸・棚瀬大爾・薛 自求 (2008): 長岡実証試験サイトにおける二酸化炭素圧入実験の坑井間弾性波トモグラフィによるモニタリング. *Journal of the Mining and Material Processing Institute of Japan*, **124**, 78-86.
- 酒井明男 (2008): 繰り返し三次元地震波探査による圧入 CO₂ および物理量の評価手法の開発について. *石油技術協会誌*, **73**, 186-199.
- Sharma, S., Cook, P. and Berly, T. (2008): Australia's first geosequestration demonstration project commences injection. *Greenhouse Issues*, **90**, 18-19.
- Spetzler, J., Xue, Z., Saito, H. and Nishizawa, O. (2008): Case study: time-lapse seismic crosswell monitoring of CO₂ injected in an onshore sandstone aquifer. *Geophysical Journal International*, **172**, 214-225.
- 棚瀬大爾・薛 自求・嘉納康二 (2008): 長岡における二酸化炭素圧入実証試験. *Journal of the Mining and Material Processing Institute of Japan*, **124**, 50-60.
- 薛 自求・中尾信典 (2008): CO₂ 地中貯留—世界各国の技術動向と政策動向および日本の課題—. *地学雑誌*, **117**, 722-733.
- Xue, Z. and Ohsumi, T. (2004): Seismic wave monitoring of CO₂ migration in water-saturated porous sandstone. *Butsuri-Tansa (Geophysical Exploration)*, **57**, 25-32.
- 薛 自求・渡辺二郎 (2008): 長岡実証試験サイトにおける二酸化炭素挙動モニタリングへの物理検層の適用. *Journal of the Mining and Material Processing Institute of Japan*, **124**, 68-77.
- 横田俊之・西田明夫・溝畑茂治・島田伸介・村岡 直 (2003): 石油 EOR における貯留層流体挙動の把握—初動走時トモグラフィを用いたモニタリング—. *物理探査*, **56**, 181-189.

(2008 年 5 月 12 日受付, 2008 年 8 月 29 日受理)