X線CT法による 多孔質岩石内CO₂流動および貯留現象の分析*

佐藤 晃¹ 有水 拓人²
田中 克也² 塩手 隆志²

Analysis of the Migration and Storage Phenomena of CO₂ in the Porous Media by Means of X-ray CT

by Akira SATO^a, Takuto ARIMIZU^b, Katsuya TANAKA^b and Takashi SHIOTE^b

- a. Associate Professor, Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University,
Kurokami 2-39-1, Kumamoto, 860-8555, Japan (Corresponding author E-mail:
asato@kumamoto-u.ac.jp)
b. Graduate Student, Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University,
Kumamoto, Japan

The migration phenomena of CO₂ in the porous rock sample were visualized by X-ray CT. Then the storage ability of the rock sample was analyzed as the replacement ratio determined from the X-ray CT image data. This is the fundamental study related to the CO₂ geological sequestration and the understanding CO₂ migration process during and after the storage is one of the most important factors. In this study, CO₂ migration visualization system was newly developed and the CO₂ injection test into the water saturated porous rock samples was conducted. The nominal density change due to the replacement by CO₂ was visualized by X-ray CT. Here, the method to evaluate the amount of CO₂ replacement in the rock sample from the X-ray CT data was introduced, and the value of Berea sandstone was estimated. From the observation of replacement process in the rock sample, anisotropy of the migration process and storage ability was clarified.

KEY WORDS: CO₂, Geological Sequestration, Migration Process, Porous Media, X-ray CT

1. 緒 言

近年、地球温暖化の影響と思われる異常現象が世界中で発生している。その主たる原因として、石油や石炭といった化石燃料の大量消費によって大気中に放出された温室効果ガスの急激な濃度上昇が挙げられる¹⁾。この温室効果ガスの排出量を制限するために「京都議定書」が2005年2月16日に発効し、日本は温室効果ガスの排出量を1990年排出量(11億4400万トン)比で少なくとも6%削減することを定めているものの、2006年度の排出量は12億7400万トンと約11.4%の増加しているのが現状である²⁾。温室効果ガスの中でも最も排出量が多い二酸化炭素(以下CO₂と称す)の場合、日本における大規模な排出源としては火力発電所等のエネルギー転換部門、製鉄工業などの産業部門があり、いずれも全体の排出量の約30%ずつを占めている²⁾。こうした大規模の排出源からCO₂(Carbon-dioxide)を分離(Capture)し、地中の帯水層に貯留(Storage)するCO₂地中貯留(CCS)が有望なCO₂削減方法として考えられており³⁾、日本においても新潟県長岡に

て地中貯留の実証試験が試みられている⁴⁻⁶⁾。

CO₂地中貯留では、帯水層を形成している多孔質岩体中での超臨界あるいは液体状態にあるCO₂の挙動特性ならびに貯留特性の評価が重要である。多孔質岩石内でのCO₂の挙動を把握する手法としてはこれまで弾性波探査手法が応用されてきた^{7,8)}。これは、水に比較して密度の小さいCO₂が空隙内部に進入することで見かけの密度が低下し、その結果弾性波速度が変化することを利用した方法である。弾性波トモグラフィーでは、解析において分割された領域内での弾性波伝播挙動を一樣と仮定し、平均的なCO₂の流動フロントの挙動を可視化している。また、この手法は実フィールドにも適用されているものの、一方で、圧入されたCO₂の充填率や総量の定量評価には至っていないのが現状である⁶⁾。したがって、岩石試料内部でのミクロな視点から超臨界CO₂の岩石での圧入・流動現象のメカニズムをより詳細に明らかにし、それらと弾性波トモグラフィーの結果を結びつけることなどにより、より詳細な貯留計画の立案と貯留CO₂の定量評価が可能になってくると考えられる。弾性波以外の非破壊検査法を用いた方法としてはMRI(磁気共鳴映像法)を適用した研究⁹⁾があり、岩石試料内部でのCO₂の挙動を水の流動を通して可視化する有用な手法である。しかし、測定原理から計測に用いる岩石の種類が限られる点や、一般的にX線CTなどの可視化技術に比較して空間分解能が低く、岩石試料の分析への適用に関しては今後の発

*2009年2月23日受付 2009年5月13日受理

1. 普通会员 博士(工) 熊本大学大学院自然科学研究科 環境共生工学専攻 准教授

2. 熊本大学大学院自然科学研究科 院生

[著者連絡先] FAX: 096-342-3694 (熊本大学・佐藤)

E-mail: asato@kumamoto-u.ac.jp

キーワード: CO₂, 地中貯留, 移行プロセス, 多孔質岩, X線CT

Fig.1 X-Ray CT scanner operated by Kumamoto University (TOSCANER-20000RE).

展が期待されるところである。

本研究では、超臨界 CO₂ の岩石内での圧入・流動の様子を、非破壊検査法の一つである X 線 CT スキャナー法を用いて可視化し、それを詳細に分析して超臨界 CO₂ の圧入・流動メカニズムを明らかにすることを目的とする。CO₂ 地中貯留では CO₂ は液体あるいは超臨界状態を想定している。室温で CO₂ を液化するためには 4MPa 程度以上、超臨界状態を保つためには 32℃ 以上の温度で 7.4MPa 以上の圧力を保持しなければならない。したがって本研究では、このような高封圧環境下で岩石試料の流動試験が可能であり、かつ、X 線 CT を用いて可視化可能な新たなシステムを開発する。さらに X 線 CT 法により得られた画像データから岩石内部を流動する CO₂ の情報を抽出する方法を提案し、岩石内部に存在する CO₂ の流動特性の分析と貯留量の定量評価を試みる。

2. 実験装置および実験方法

2・1 X 線 CT スキャナー

本研究では非破壊検査技術の 1 つである産業用 X 線 CT スキャナー (TOSCANER-20000 RE) (Fig. 1) により岩石内 CO₂ の可視化と分析を行う。X 線 CT スキャナーとは物体を透過した X 線の減衰から物体内部の密度分布を可視化する装置であり、具体的には、物体の密度に比例する X 線吸収係数 f_m の分布を求める方法である¹⁰⁾。その表示方法としては、X 線吸収係数 f_m の値を適当にスケールした CT 値と呼ばれる量が用いられる。ここで、水と空気の水 X 線吸収係数をそれぞれ f_m^{water} および f_m^{air} と表記すると、X 線吸収係数が f_m である箇所の CT 値 C は次式で表される。

$$C = K \cdot \frac{f_m - f_m^{\text{water}}}{f_m^{\text{water}}} \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、本研究で使用した X 線 CT スキャナーの場合 $K=1,000$ である。つまり、CT 値とは水と空気の水の密度差を 1,000 等分した量として表される。本スキャナーの場合、空気が -1,000、水が 0 である。

X 線 CT スキャナーでは 1 画像を構成する画素数が重要なパラメータとなるが、本 X 線 CT スキャナーの場合は最大 2048 × 2048 画素の撮影まで可能であり、このときの 1 画素の辺長は 0.072mm である。これにより、亀裂岩石内の空隙といった微細な空間の分析が可能になる。本システムの仕様ならびに性能の詳細は Sato et al.¹¹⁾ を参照されたい。

2・2 X 線 CT 用超臨界 CO₂ 流動試験システム

液体あるいは超臨界状態にある CO₂ の多孔質岩石内での流動

Fig.2 Visualization system of supercritical CO₂ migration and storage process in the porous media.

現象を可視化するために、新たに X 線 CT 用超臨界 CO₂ 流動試験システムを開発した。本システムは、圧力および流量をコントロールするシリンジポンプ 2 台と、X 線 CT で岩石試料の可視化が可能である高耐圧容器部分から成る (Fig. 2)。

まず、耐圧容器部分について説明する。CO₂ を超臨界状態に保つためには 8MPa 以上の耐圧性能を有する圧力容器が必要である。一方で、本研究で分析の中心となる X 線 CT で耐圧容器内部を可視化するためには、X 線が十分透過する低密度の材料を用いて容器を作成する必要がある。そこで本研究では、耐圧容器の主要部分として高引張強度を有し、かつ、密度の小さいカーボン樹脂製のチューブを用いた。このチューブ部分はカーボンファイバーを軸方向と周方向に重ね合わせて焼き付けたものである。カーボン樹脂の引張り強度はカーボン樹脂の密度に依存するものの、一般的に 700MPa ~ 1GPa と高強度である。そのため、チューブ部分の耐圧限界を仮に 80MPa とした場合でもチューブ肉厚を 5mm 以下に抑えることができる。さらに、カーボンチューブの密度は 1.6g/cm³ と比較的低密度のため X 線の減衰を抑制できる。本研究で開発した高耐圧容器を Fig. 3, 4 に示す。この図に示すように、カーボンチューブの両端にはアルミ製のフランジが取り付けられており、軸方向の膨張についてはステンレス製のシャフト 4 本で支えている。このシャフト部分は撮影断面に入らないようになっている。耐圧容器部分がカーボン樹脂であるため内部を目視することはできないが、岩石試料の撮影断面は容易に設定可能である。寸法は、チューブ部分が外径 80mm、内径 70mm、長さ 160mm である。また、フランジは縦 140mm、横 120mm、シャフトは直径 20mm、長さ 220mm である。さらに、台座部分を合わせた重量は約 7 kg と一般的なスチール製の耐圧容器に比較して非常に軽量であり、X 線 CT スキャナー装置への設置も容易である (Fig. 4)。

CO₂ の流入・流出の制御は、圧力容器の両端部に接続された 2 台のシリンジポンプ (ISCO シリンジポンプ 500D) で行う。このポンプのシリンジ部の容量は 500ml であり、最大で 25MPa まで加圧することができる。2 台のシリンジポンプはそれぞれ条件に応じて流量制御、圧力制御の選択が可能である。

2・3 岩石試料

実験に用いる岩石試料はベレア砂岩で、立方体の岩石試料からコア抜きし、直径 50mm、長さ 50mm の円柱状に成形した。ここで使用したベレア砂岩の平均空隙率は 24% である。また、このベレア砂岩は購入時より堆積層が外見からはっきりと判別することができるものであった。そこで岩石試料の異方性を検討するために、堆積層に対して垂直および平行方向にそれぞれコア抜きを行った。岩石試料は Fig. 5 に示すように 1 つの端面を開放面とし、

Fig.3 Pressure vessel for visualization of CO₂ migration process in the porous media by X-ray CT. Main part of the vessel is made of carbon fiber reinforced tube and the allowable pressure is up to 20MPa.

Fig.5 Rock sample.

円柱側面をエポキシ系樹脂でコーティングした。また、開放面の反対面にはポラスストーンと排出用のステンレス製ドレインパイプを設置し、同じくエポキシ系樹脂でシールコーティングした。これにより、開放面から流体が圧入された場合には円柱軸方向の1次元流れが再現されることになる。堆積層に対して垂直、平行方向にコアリングしたそれぞれの試料のX線CT画像をFig. 6に示す。このように、X線CT画像上でも堆積層の構造を明瞭に判別することができる。ここでは便宜的に、1次元流れ方向が堆積層に垂直である試料をType V、堆積層に平行である試料をType Pと称する。

3. 固有浸透率

先に示したX線CT用超臨界CO₂流動試験装置は液体や超臨界CO₂といった高圧環境下での流動試験を目的として開発した。ここで、シリンジポンプは流量および圧力を精度良くコントロール出来る点、ならびに、超臨界CO₂だけでなく他の流体でも高圧環境下で使用に耐える点を考慮すると、透水特性を評価する際の定流量試験システム、あるいは定圧試験システムとしても十分適用が可能である。すなわち、圧力容器内を水で充填し、完全に飽和させた岩石試料を用いて定流量あるいは定圧で流入面から水を圧入し、排出面からの水の流出量の経時変化を計測することによって、透水特性の評価が可能である。

本研究で用いたベレア砂岩は比較的透水性の高い岩石であることが分かっているため、ここでは圧入流量一定で透水試験を実施し固有浸透率を算定した。先に示したように、本研究ではベレア砂岩を堆積層に対して垂直 (Type V)、平行方向 (Type P) にコアリングを行っているため、この2方向についてそれぞれ透水係数の算定を行った。Type V、Type Pの固有浸透率を k_v および k_p とすると、 $k_v = 1.1 \times 10^{-14} \text{ m}^2$ 、 $k_p = 3.4 \times 10^{-14} \text{ m}^2$ であり、堆積層に

Fig.4 Installation of the developed pressure vessel in the X-ray CT scanner.

Fig.6 X-ray CT images of Berea sandstone.

対して透水特性は異方性をもつことが分かった。

なお、本システムを用いてより透水性の低い岩石試料の固有浸透率 (10^{-18} m^2 オーダー) の測定も可能であるが、詳細については別の機会に紹介したい。

4. CO₂ 流動可視化試験方法

実験に使用する岩石試料は予め真空チェンバーを用いて完全に水で飽和させた。この岩石試料をFig. 3に示したように、排出用に取り付けられたステンレスチューブを継ぎ手を介して圧力容器内に固定される。その後、岩石空隙内の水が流動しないよう、排出側のバルブを閉めた上で圧力容器内に液体CO₂を充填する。本研究では、CO₂の圧力が8MPaの状態を初期状態として岩石内部にCO₂を圧入する。また、20℃～25℃の温度条件で実験を実施している。先に述べたように、試料として用いたベレア砂岩は浸透性の高い岩石試料であるため、本研究では流入量一定条件の下で岩石試料内部にCO₂を圧入するものとする。ここでは、前述の寸法の岩石試料に対して1 ml/minの流量で1回の注入につき5mlのCO₂を圧入した後、X線CTの撮影を実施した。岩石試料の寸法および平均空隙率が約24%であることから、この1回の注入で圧入した体積は、空隙中の水が全てCO₂に置換されたと仮定した場合に圧入方向 (x軸方向) に1/5だけCO₂が進行する量として設定した。

ここで、CO₂と空隙内を満たしている水との密度差の影響を考える。本研究では20℃～25℃の温度条件で実験を実施しているが、この場合8MPaに加圧されたCO₂の比重は0.8程度と水よりも軽い。したがって、CO₂を岩石試料内部に圧入する場合、岩石内部での流動は水との密度差により、より鉛直上向きの流れが生

Fig.7 Three patterns of CO₂ flow. Fig.8 X-ray CT images of Berea sandstone after CO₂ injection.

じやすいことが考えられる。そこで、このような水とCO₂の密度差の影響を検討するため圧入方向を水平方向 (Case 1)、鉛直上向き方向 (Case 2)、鉛直下向き方向 (Case 3) の3方向 (Fig. 7) について圧入実験を実施した。具体的には、圧入時に圧力容器の向きを変えることで方向を制御した。

5. CO₂ 流動現象の可視化とみかけ密度変化量の抽出

圧入方向が水平方向である場合 (Case 1) を例に取り、Type V の試料にCO₂を圧入した場合に得られたX線CT原画像をFig. 8に示す。しかし、図に示すようにこのままでは岩石中のCO₂の挙動を判別することは困難である。そこで、ここでは画像間差分法を適用する。画像間差分法とは、2つの画像データ間で差分を行うことであり、これにより、2つの画像の間での違い、すなわちCT値の差を抽出することができる。岩石試料に対するX線CT法の適用に関するこれまでの研究により、画像間差分法には次のような利点がある^{10, 11)}。

- 1) 見かけ密度が逐次変化していく過渡現象の抽出が可能
- 2) 試料の形状・大きさに依存して発生するカップリング効果の除去が可能
- 3) 岩石の構造の不均質の除去が可能

本研究で想定している水-CO₂の置換プロセスとは、岩石空隙中に存在する水が密度の小さいCO₂に置換されるプロセスであり、岩石試料のみかけ密度が変化していく現象である。したがって、本プロセスの分析に画像間差分法は有効であると考えられる。以下では、画像間差分法概念と具体的な手順を示す。

5・1 画像間差分法

画像間差分法概念については既にSato et al.^{10, 11)}が述べているが、本研究に適した画像間差分法の手順を以下に示す。X線CT画像は各画素にCT値を与えることで画像を構成している。ここで、画像データ内での画素 (pixel) に番地 (i, j) を与える。この番地 (i, j) でのCT値を $C(i, j)$ とする。ここで、初期状態での

各番地のCT値を $C_0(i, j)$ とする。次に、開放面からCO₂を圧入することにより岩石空隙内の水を液体CO₂で置換する。一定流量圧入後にX線CT撮影を実施し、得られた画像について同じようにCT値の番地を定める。このときのCT値を $C_t(i, j)$ とする。

さて、CT値には密度に関する情報のほかに、種々のノイズ成分、カップリング、構造の不均質性など様々な情報が混在している。これらの影響を考慮すると、上記の $C_0(i, j)$ および $C_t(i, j)$ は次のように分解できる。

$$C_0(i, j) = C_0^{\text{pore}}(i, j) + C^{\text{mat}}(i, j) + C^{\text{cup}}(i, j) + \delta_0(i, j) \dots \dots \dots (2)$$

$$C_t(i, j) = C_t^{\text{pore}}(i, j) + C^{\text{mat}}(i, j) + C^{\text{cup}}(i, j) + \delta_t(i, j) \dots \dots \dots (3)$$

ここで、 $C_0^{\text{pore}}(i, j)$ は岩石空隙内にある水のCT値、 $C^{\text{mat}}(i, j)$ は岩石マトリックス部のCT値、 $C^{\text{cup}}(i, j)$ はカップリングにより生じたCT値であり、同じ試料を用いた場合には時間により変化するものではない。また、 $\delta_0(i, j)$ および $\delta_t(i, j)$ はそれぞれの状態で観測されるノイズ成分であり、筆者らのこれまでの研究によりほぼランダムノイズとみなすことのできる不可避の成分であることが分かっている。式 (2) および式 (3) の関係から、CO₂ 圧入後の画像と初期画像との間で画像間差分を実施して得られたCT値の増分 $\Delta C_t(i, j)$ は次式で表わされる。

$$\begin{aligned} \Delta C_t(i, j) &= C_0(i, j) - C_t(i, j) \\ &= \{C_0^{\text{pore}}(i, j) - C_t^{\text{pore}}(i, j)\} + \{\delta_0(i, j) - \delta_t(i, j)\} \dots \dots \dots (4) \end{aligned}$$

このように、画像間差分法を適用することにより、ノイズの影響を完全に消去することはできないものの、岩石の構造や形状に関する情報が除去され、空隙内部での変化量を抽出することが可能である。

5・2 CO₂ 流動による密度変化量の抽出

先にFig. 8で示したX線CT画像から差画像を作成する手順について述べる。まず、飽和岩石試料を耐圧容器内に設置し、CO₂

Fig.9 X-ray CT images after the image subtraction by initial image (Type V, Case 1).

Fig.10 Mean increment of CT values in the x-axis direction (Type V, Case 1).

の充填を終了した段階、すなわち流動試験開始前の状態で X 線 CT 撮影を行った画像を初期画像とする (Fig. 8 (a))。次に、前述の CO₂ 圧入試験を実施し各段階で X 線 CT 撮影を実施する。このとき得られた画像と初期画像との間で画像間差分を実施することにより、岩石内に進入した CO₂ に関する情報のみを抽出することができる。このとき、画像を構成する各ピクセルの CT 値は式 (4) の通りである。この手順を適用して得られた差画像を Fig. 9 に示す。このように、原画像からは判別が困難であったものが、x 軸方向にほぼ一様に CO₂ が流れている様子が識別出来る程度にデータを抽出することができる。

次に、得られた差画像を用いて CT 値を y 軸方向にスタッキングし、x 軸方向の CT 値増分分布を求めた。その結果を Fig. 10 に示す。以上の処理を行うことで、CT 値の増加している領域が x 軸方向に広がっていく過程、つまり、空隙内に存在する水が CO₂ に置換されていく過程を明瞭にとらえることができる。また、この図から、CO₂ の置換は必ずしも一様ではなく、場所により変化の割合が異なっている様子が読み取れる。

同様の手順で、Type P の試料について CO₂ を水平方向に圧入した場合 (Case 1) に得られた X 線 CT 画像について、画像間差分法を適用した結果を Fig. 11 に示す。ここでも、画像はそれほど明瞭ではないものの、空隙内の水が CO₂ で置換された様子を確認することができる。しかし、この場合は Type V の試料とは異なり、x 軸方向にほぼ一様に置換が進行している訳ではなく、堆積層に平行に岩石試料内のある一部分の層のみを CO₂ が進行していることが分かる。そこで、ここでは x 軸方向に CT 値をスタッキングし、y 軸方向の CT 値増分分布を求めた。その結果を Fig. 12 に示す。この図からも分かるように、堆積層に平行に圧入した場合にはある一部の層で CO₂ への置換が早い段階で進行し、圧入を続けても置換が起きない層があることが分かる。このように、同じ岩石試料であっても CO₂ の圧入方向の違いにより置換の様

子が全く異なっていることが分かる。

さて、筆者らは本研究に先駆けて多孔質岩石試料内での水→空気置換実験を実施し、X 線 CT スキャナーでその挙動を可視化している。上記の Type V の CO₂ への置換プロセスは、有水が示した水→空気置換実験の分析結果¹²⁾と非常に良く一致している。これは、流れを支配するパラメータのうち、粘性係数が空気 (20℃で 10^{-5} Pa・s 程度)、超臨界あるいは液体 CO₂ (10^{-6} ~ 10^{-5} Pa・s 程度 (温度・圧力で大きく変化)) と、水のそれ (20℃で 10^{-3} Pa・s 程度) に比較していずれも十分に小さいためであると考えられる。ただし、水と空気の場合、密度差はほぼ水の密度の大きさとなり、この場合には差画像により非常に明瞭に置換の様子が可視化されている。一方、水→CO₂ の置換の場合、本実験条件での密度差は約 0.2×10^3 [kg/m³] と水→空気の場合の約 1/4 と変化が小さく、Fig. 10 および Fig. 12 で示した CT 値の変化量も 20 程度と小さい。しかし、必要な画像処理法を適用することにより、わずかな変化量でも十分に分析可能であることが確認出来る。

6. X 線 CT 画像を用いた置換率の算定

岩石空隙内で起きる水→CO₂ の置換が起きたとき、全空隙体積に対して置換された CO₂ の占める体積の割合を置換率と定義し、画像間差分により得られた CT 値の変化量から置換率を評価する方法を述べ、さらに、X 線 CT 画像データからベレア砂岩の置換率を評価した結果について述べる。

6・1 置換率の定義

本件研究で用いた X 線 CT スキャナーの場合、先に述べたとおり CT 値とは水と空気の密度の差を 1,000 等分した量である。このことから、得られた CT 値の変化量から水→CO₂ の置換プロセスによって生じた見かけの密度の変化量 $\Delta\rho$ は次式により得られる。

Fig.11 X-ray CT images after the image subtraction by initial image (Type P, Case 1).

Fig.12 Mean increment of CT values in the y-axis direction (Type P, Case 1).

$$\Delta\rho = \frac{\Delta C_t(i,j)}{1000} \quad \dots\dots\dots (5)$$

次に、各画素で上式の見かけ密度変化が生じたとき、画素領域内において空隙の体積に対する置換されたCO₂の体積の比率である比体積 ΔV を考える。水の密度を ρ_w 、CO₂の密度を ρ_{CO2} と表記すると、単位体積中で水が完全にCO₂で置換された場合に生じる密度変化は $\rho_w - \rho_{CO2}$ であるので、式(5)の関係から次式が得られる。

$$\Delta V = \frac{\Delta\rho}{\rho_w - \rho_{CO2}} = \frac{\Delta C_t(i,j)}{1000 \cdot (\rho_w - \rho_{CO2})} \quad \dots\dots\dots (6)$$

一方、岩石試料の空隙率と各画素に含まれる岩石マトリクス部と

空隙部の比が一致していると考え、水がCO₂で置換される最大の比体積は ϕ である。したがって、全空隙体積に対して水→CO₂の置換が起こった体積比を置換率 R_V と定義すると、これは次式で表わされる。

$$R_V = \frac{\Delta V}{\phi} = \frac{\Delta C_t(i,j)}{1000 \cdot \phi \cdot (\rho_w - \rho_{CO2})} \quad \dots\dots\dots (7)$$

したがって、差画像データから得られる $\Delta C_t(i,j)$ の分布から、岩石内部での水→CO₂置換率を評価することができる。

6・2 ベレア砂岩の置換率と堆積方向との関係

先に Fig. 10 および Fig. 12 で示した CT 値の増分を式(7)の関係に代入することにより、Type V についてはx軸方向、Type P についてはy軸方向の置換率 R_V の分布を求めた。その結果を Fig. 13 および Fig. 14 に示す。式(7)に示したとおり置換率の相対的な大小関係はCT値の増分の分布に一致するが、これにより空隙内部に存在するCO₂の具体的な量の算定が可能となる。Fig. 13 ではCO₂の進行に伴い排出側に向かって置換率は0.4程度まで上昇している。一方、Fig. 14 では一部の層のみで置換が置き、最も置換が起きた領域でも0.4程度で、ほとんど置換の起きていないと考えられる領域も多く存在する。次に、Type V および Type P の撮影断面内での平均置換率とCO₂圧入量との関係をまとめて Fig. 15 に示す。このように、Type V の場合には圧入により徐々に置換率が上昇し、15ml 以上はほぼ一定値を取っている、また、この場合の置換率は0.28程度である。一方、Type P の場合には一部分の層を選択的に置換されているため、全体の置換率は0.08程度にとどまっており、圧入方向の違いにより置換率が大きく異なっている。本研究では同じ実験を各方向に2回ずつ実施し、いずれも同じ傾向を示した。

6・3 水とCO₂の密度差の影響

ここまで、岩石の堆積層に対する圧入方向、撮影断面の方向から2種類の岩石試料 Type V および Type P を用いて Case 1(Fig. 7) の場合について実験を実施し、CO₂置換プロセスと置換率について述べた。さらにここでは、水とCO₂の密度差について考える。先に述べたように、Case 1 の他に本研究では重力の作用方向に対して Case 2、Case 3 とさらに2種類の圧入方向を設定し(Fig. 7)、それぞれの場合について Type V および Type P の岩石試料を用いてCO₂圧入試験を実施し、密度差に対する影響を検討する。なお、実験手順は先に述べた方法と同じである。

岩石試料全体での平均置換率と圧入流量の関係を求めた。先に Fig. 15 で示したように、Case 2 および Case 3 における結果をそれぞれ Fig. 16 および Fig. 17 に示す。Fig. 15 ~ Fig. 17 から、いずれの場合も Type V の方が Type P よりも置換率は大きくなり、固有浸透率と同様に堆積層の方向に対して大きな異方性があることが確認できる。

次に、Type V に関して圧入方向による違いについて考える。Fig. 15 ~ Fig. 17 のいずれも圧入流量と置換率の関係は同じ傾向を示すが、Case 2 および Case 3 のように鉛直方向に圧入した場合の方が Case 1 よりも置換率は0.38 ~ 0.40 程度とやや大きな

Fig.13 Mean replacement ratio R_V in the x -axis direction (Type V, Case 1). Fig.14 Mean replacement ratio R_V in the x -axis direction (Type P, Case 1). Fig.15 Mean replacement ratio R_V at each amount of CO₂ injection (Case 1). Fig.16 Mean replacement ratio R_V at each amount of CO₂ injection (Case 2). Fig.17 Mean replacement ratio R_V at each amount of CO₂ injection (Case 3).

る傾向がある。これは、Case 1 のように横向きに圧入した場合、固有浸透率の大きい流れやすい層内で鉛直上向きに CO₂ が上昇し、撮影断面内での置換率が下がったものと考えられる。一方、Case 2 や Case 3 の場合には、固有浸透率の比較的低い層を CO₂ が通過する前に、その直前の固有浸透率の高い層に広く充填され、それが水平方向に等しく分布したまま X 線 CT で撮影されたと考えられる。

次に、Type P に関して圧入方向に違いについて考える。この場合も全体的に同じ傾向を示しており、圧入の初期の段階で置換率が一旦上昇すると、それ以降は置換率は上昇しない。これは Case 1 で述べたように、通りやすい層（固有浸透率の大きい層）だけを選択的に CO₂ が通過するためであると考えられる。また Case 2 の場合には置換率は圧入流量の増加とともに減少している。これは、密度差によって生じる浮力と圧入方向が一致しているため、岩石試料中の CO₂ がより通過しやすい状態となったためであると考えられる。

6・4 CO₂ 貯留可能推定量との比較

地球環境産業技術研究機構 (RITE) では、CO₂ の貯留可能量 M_{CO2} [kg] の算定式として次式を用いている¹³⁾。

$$M_{CO2} = S_f \times A \times h \times \phi \times S_g \times \frac{\rho}{B_{gCO2}} \quad (8)$$

ここで、用いられているパラメータは以下の通りである。

S_f : 貯留率 (カテゴリー別に 50% あるいは 25% の値を設定)

A : 面積 (m²)

h : 有効層厚 [層厚×砂泥比 (m)]

ϕ : 空隙率

S_g : 超臨界 CO₂ 飽和率 (50%)

B_{gCO2} : CO₂ 容積係数 (0.003)

ρ : CO₂ 密度

式 (8) の関係から、単位空隙体積に対する CO₂ の貯留量、つまり、本研究で用いている置換率 R_V を求めると次式のような式となる。

$$R_V = S_f \times S_g \dots\dots\dots (9)$$

先に示したパラメータを用いると、置換率は $0.125 < R_V < 0.250$ 程度と見積もられる。本研究で示したベレア砂岩の Type V の置換率は 0.4 程度と想定される範囲よりも大きな値である一方、Type P の置換率は 0.1 未満である。このように同じベレア砂岩を用いた実験でも値が大きく異なることから、実際の貯留量の算定にはより慎重な評価が必要であると考えられる。また、本研究のように岩石コアを用いた置換実験を、地中貯留対象とするサイトの岩石で同じ圧力・温度条件で実施することにより、より詳細な地中貯留計画の立案が可能になるものと考えられる。

7. 結 言

本研究では、超臨界 CO₂ の岩石内での圧入・流動の様子を、非破壊検査法の一つである X 線 CT スキャナー法を用いて可視化し、X 線 CT 画像データから多孔質岩石試料内での CO₂ の圧入・流動メカニズムを明らかにするとともに、空隙を満たしている水が CO₂ で置換された量を示す置換率を定義し、岩石の構造と置換率の関係、圧入方向と置換率の関係について論じた。本研究により得られた知見をまとめると以下の通りである。

まず本研究では、岩石試料内部での CO₂ 流動現象を産業用 X 線 CT スキャナーにより可視化するために、新たに X 線 CT 用超臨界 CO₂ 流動試験システムを開発した。本試験システムを用いて実験に供されたベレア砂岩の固有浸透率の測定した結果、堆積層に対して平行、垂直方向で透水特性に大きな異方性があることを示した。

次に、本システムを用いて岩石試料への CO₂ 圧入試験を実施し、その様子を X 線 CT スキャナーにより可視化した。原画像からは CO₂ の挙動を判別することはできなかったが、画像間差分法ならびにデータのスタッキングにより、CO₂ の圧入により空隙内の水が CO₂ に置換の様子をとらえることができた。また、この結果より、実際に岩石試料内部で水が CO₂ に置換された割

合、すなわち、置換率 R_V を評価した。その結果、固有浸透率の異方性と同様に、置換率にも異方性があることが明らかになり、同じ岩石試料であっても堆積層に垂直に CO₂ を圧入した場合 (Type V) には置換率は 0.4 程度の値を取り、水平方向に圧入した場合 (Type P) よりも大きいことが分かった。

水と CO₂ の密度差の影響を検討するために、水平方向だけでなく鉛直方向に対して上向き、下向きの 3 種類の方向に CO₂ の圧入を実施した。その結果、Type V の試料の場合には、鉛直方向に圧入を行った場合の方が貯留率がやや大きくなる傾向を示した。

地球環境産業技術研究機構 (RITE) で用いている CO₂ 貯留可能量の算定式から、本研究で定義した置換率を評価した結果 $0.125 < R_V < 0.250$ 程度であった。しかし、本研究で用いたベレア砂岩の場合には、圧入方向により CO₂ の貯留量が大きく異なっていた。本研究で示したように岩石の異方性などを事前に評価することにより、より詳細な地中貯留計画の立案が可能になるものと考えられる。

References

- 1) Ministry of the Environment: Greenhouse Gas Emission, <http://www.env.go.jp/earth/ondanka/ghg/>
- 2) Green House Inventory Office of Japan: Data of Greenhouse Gas Emission in Japan (1990-2006) (2008), <http://www.gio.nies.go.jp/aboutghg/nir/nir-j.html>
- 3) P.Freund: Exploration Geophysics, **37** (2006), 1-6.
- 4) D.Tanase, Z.Xue and K.Kano: Journal of MMIJ, **124** (2008), 50-60.
- 5) Z.Xue, J.Watanabe: Journal of MMIJ, **124** (2008), 68-77.
- 6) H.Saito, D.Nobuoka, H.Azuma, D.Tanase and Z.Xue: Journal of MMIJ, **124** (2008), 78-86.
- 7) R.A.Chadwick, O.Eiken and E.Lindeberg: Proc. Of the 7th SEGJ Int. Symp., Sendai (1993), pp.24-26.
- 8) Ziqiu Xue, Takashi Ohsumi: Exploration Geophysics, **35** (2004), 25-32.
- 9) T.Kanesue, T.Ishii, S.Tsushima and S.Hirai: Journal of Thermal Science and Technology, **1** (2006), No.05-0007.
- 10) A.Sato, D.Fukahori, A.Sawada and K.Sugawara: Journal of MMIJ, **120** (2004), 365-371.
- 11) A. Sato, D. Fukahori, A. Takebe, A. Sawada, and K. Sugawara: Proceedings of 2006 GeoCongress, Sensing Methods and Devices, Application of X-ray Computed Tomography, (2006), CD-ROM.
- 12) T.Arimizu, K.Tanaka, A.Sato & H.Yonemura: Proc. 12th Japan symposium on Rock Mechanics: JSRM2008, (2008), CD-ROM.
- 13) The Research Institute of Innovative Technology for the Earth (RITE): Report of research and development of underground storage technology for carbon dioxide (2005), pp.1104-1525.