多孔質体における超臨界 CO₂ の流動挙動に関する 室内実験ならびにシミュレーション研究*

坂本 靖英¹ 鈴木 佑介² 田中 敦子³ 天満 則夫⁴
羽田 博憲⁵ 駒井 武⁶ 山口 勉⁷

Simulation Study of a Laboratory-Scale Experiment for Flow Behavior of Supercritical CO₂ in Porous Media

by Yasuhide SAKAMOTO^{a*}, Yusuke SUZUKI^b, Atsuko TANAKA^a, Norio TENMA^c,
Hironori HANEDA^c, Takeshi KOMAI^a and Tsutomu YAMAGUCHI^b

a. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Institute for Geo-Resources and Environment, 16-1 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8569, Japan

(*Corresponding author: E-mail sakamoto-yasuhide@aist.go.jp)

b. Toho University, Faculty of Science, Department of Environmental Science

c. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Methane Hydrate Research Center

The quantitative estimation for the amount of storage and leakage of injected CO₂ under the environment of underground is necessary for risk assessment of carbon dioxide capture and storage (CCS). In addition, permeability characteristics of supercritical CO₂ and water in porous media are very important parameter in order to predict migration of injected CO₂ dependent on time and space.

In this study, using sand column, we conducted experimental study on flow behavior of supercritical CO₂ and water in porous media. Grain size and temperature were changed as an experimental parameter. Using experimental data for flow behavior such as discharge rate of fluids, differential pressure between inlet and outlet of sand column, we conducted a numerical simulation for this laboratory-scale experiment in order to clarify permeability characteristics of supercritical CO₂ in porous media. As relative permeability model for simulation, the extended Corey model that N_{krw} and N_{krw} as indexes were introduced into the original one was used. By changing the values of N_{krw} and N_{krw} , history matching of flow behavior and pressure change during both of CO₂ and water injection processes was carried out and the shapes of relative permeability curves that allowed us to reproduce CO₂-water multi-phase flow behavior were optimized.

Comparison of the optimized relative permeability curves in the process of CO₂ injection indicated that 1) water mobility was relatively high compared with that of CO₂ when grain size was large and 2) relative permeability to CO₂ became higher under the condition below critical point of CO₂. In addition, we interpreted transport phenomena of CO₂ after shutoff of CO₂ injection on the basis of relative permeability curves obtained for water injection process. As a result, it was found that 1) liquid CO₂ easily migrated into geological formation in the cases of small grain size and low temperature and 2) dissolved CO₂ migration due to groundwater flow contributed to the change of CO₂ distribution under the condition of high water saturation.

KEY WORDS: Carbon Dioxide, CCS, Geological Storage, Risk Assessment, Permeability, Multi-Phase Flow, Simulation

1. 緒 言

1990 年代より、地球温暖化ガスの排出削減を目的として、火力発電所等で発生する CO₂ の地中貯留が構想され、1) 十分な貯留・隔離能力を有する、地質構造が明らかな枯渇油田・ガス田への貯留、2) 石油・天然ガスの増産を目的とした EOR 法 (Enhanced Oil Recovery) や EGR 法 (Enhanced Gas Recovery) への適用、3) 炭層内に包蔵されるメタンガスの採取を目的とした ECBM 法 (Enhanced Coalbed Methane Recovery) への適用といった、従来技術の転用による実証試験が実施されてきた¹⁾。しかし、油田やガス田はその分布に偏在性が大きく、適用可能な地域に限られることが問題として挙げられる。ゆえに油田やガス田と比較して地中の圧倒的に

*2011 年 3 月 14 日受付 2011 年 8 月 18 日受理 資源・素材学会平成 23 年度春季大会において一部発表

1. 正会員 工博 (独)産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門 研究員

2. 東邦大学理学部生命圏環境科学科 学生

3. 正会員 工博 (独)産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門 主任研究員

4. 正会員 工博 (独)産業技術総合研究所 メタンハイドレート研究センター 副研究センター長

5. 正会員 工博 (独)産業技術総合研究所 メタンハイドレート研究センター 主任研究員

6. 正会員 工博 (独)産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門 副研究部門長

7. 正会員 工博 東邦大学理学部生命圏環境科学科 教授

[著者連絡先] FAX: 029-861-8346

E-mail: sakamoto-yasuhide@aist.go.jp

キーワード: 二酸化炭素, CCS, 地中貯留, リスク評価, 浸透率, 混相流動, シミュレーション

Fig.1 Experimental apparatus for the evaluation of multi-phase flow behavior of supercritical CO₂ and water in porous media.

広い範囲に分布し、大規模な貯留可能性を有する帯水層が、現在貯留サイトとして最も有望と考えられており、我が国においても2003年から新潟県長岡市において注入試験が実施された²⁾。

帯水層貯留においてCO₂はその貯留効率の観点から、密度が大きく低粘度の超臨界状態での注入が想定される。CO₂の臨界点は31.2℃、7.38MPaであるので、800m以深の帯水層がこの温度・圧力条件を満たすことになる。注入されたCO₂は孔隙内に存在する水を置換しながら層内を移動し、一部が水相に溶解する。帯水層におけるCO₂の地中貯留メカニズムは、1) 層位・構造トラップ (Structural and stratigraphic trapping), 2) 残留ガストラップ (Residual CO₂ trapping), 3) 溶解トラップ (Solubility trapping), 4) 鉱物化トラップ (Mineral trapping) の4つの物理的、地化学のプロセスに大別され³⁾、注入開始からの時間スケールに依存して、1)～4)の順でCO₂隔離への寄与率が増加し、地質学的にも安定的な固定が実現されるものと考えられている。しかし、CO₂の地中貯留における主要なハザードとして注入CO₂の漏洩が懸念される⁴⁾。IPCCレポート⁵⁾では、注入時の坑井周りの漏洩や、帯水層から断層および上部不透水層を経由しての海洋もしくは大気への漏洩といった、地層中でのCO₂の移動・漏洩シナリオが示されている。貯留サイトの選定のためには、キャップロックの健全性や断層のシール性等、漏洩の可能性を最小限に留めるための事前の調査、安全性評価が重要であることは言うまでもない。その一方で、仮に漏洩が生じた場合のヒトや生態系、地域環境、ひいては地球環境への影響に関するリスク評価が必要不可欠となる。

CO₂の地中貯留のリスク評価に当たっては、注入されたCO₂の地中環境における時空間的な分布を予測することが先ずもって重要である。そのためには、浸透率や孔隙率、断層の存在等、サイト特有の地層条件を考慮した上で、CO₂漏洩シナリオに基づく数値シミュレーションを実施するとともに、CO₂の貯留量および漏洩量の定量的評価のためのシミュレーションの高精度化が求められる。帯水層内における注入CO₂の移動性評価を目的とした数値シミュレーション研究は、これまでに多数報告されている⁶⁻⁹⁾。例えばYamamotoらは、東京湾海底下60～70km²の範囲での塩水帯水層へのCO₂貯留を想定し、注入CO₂の移動のみならず、注入に伴う局所的な帯水層の圧力上昇と地表方向への地下水の移動に関して検討し、陸域を含む広範囲の浅部帯水層に

おいて、数bar程度の圧力上昇が生じることを明らかにしている。これらの数値シミュレーションにおいて、注入CO₂と水との混相流動挙動を支配する相対浸透率は、注入CO₂の時空間分布を予測する上で最も重要なパラメータとなる。しかし、既往のシミュレーション研究では、相対浸透率それ自体を計算パラメータとして取り扱っている事例が多く、帯水層における超臨界CO₂と水の浸透率特性を実験的に明らかにし、得られたパラメータを数値シミュレーションに導入することが先ずもって重要となる。一方、超臨界CO₂と水との混相流動挙動を対象とした実験的研究はいくつか報告されている。これらの研究では、貯留サイトとして想定される特定の地質構造より採取されたコアを用い、相対浸透率および毛管圧力の実測を行っていることが特徴であり、地層の種類が浸透率特性に及ぼす影響に関して検討している¹⁰⁻¹³⁾。例えばSuenagaは、古第三紀から第四紀に至る地質年代の違いに依存して、相対浸透率曲線や毛管圧力曲線が大きく変化することを明らかにしている。また、X線CTを用いてコア内の超臨界CO₂と水との混相流量挙動の可視化を行うとともに、孔隙内に流動することなく保持されるCO₂の体積割合を表す残留CO₂飽和率の定量的評価に基づき、残留ガストラップによるCO₂地中貯留の可能性について検討した事例も報告されている¹⁴⁻¹⁸⁾。しかし、流動や圧力挙動の変化等の実測データに基づく数値シミュレーションを通じて、得られた相対浸透率曲線の妥当性の検証や、曲線の形状の最適化を図った事例は報告されていない。

そこで本研究では、模擬帯水層としてサンドバックを用い、超臨界CO₂の注入による水の置換ならびに水の注入による超臨界CO₂の置換に関する室内実験を実施し、CO₂および水の排出レートや注入時の圧力挙動の変化に関する一連のパラメータを取得した。その上で、室内試験の数値シミュレーションを実施し、実験と計算結果の比較から、CO₂と水との混相流動挙動を支配する相対浸透率曲線の形状の最適化を図るとともに、混相流動挙動に及ぼす砂粒度や温度の影響について考察した。

2. 多孔質体における超臨界CO₂－水の混相流動挙動に関する室内実験

2・1 実験装置および方法

Fig. 1に実験装置の概略を示す。実験では内径50mm、長

Table 1 Experimental conditions for each run.

Run No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Used sand	Toyoura	Toyoura	Toyoura	No.7 silica sand	No.7 silica sand	No.7 silica sand	No.8 silica sand	No.8 silica sand	No.8 silica sand	Toyoura & No.7	No.7 & No.8
Temperature, °C	30.0	40.0	50.0	30.0	40.0	50.0	30.0	40.0	50.0	40.0	40.0
Pressure, MPa	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
Absolute permeability K , μm^2	15.9	16.6	13.6	9.54	9.27	9.22	0.971	2.92	2.40	11.5	3.74
Porosity, ϕ	0.372	0.374	0.376	0.391	0.391	0.390	0.430	0.410	0.410	0.386	0.382
CO ₂ injection : Drainage process											
Mass flow rate of CO ₂ , $\times 10^{-3}$ kg/min	4.37	4.37	4.37	4.37	4.37	4.37	4.37	4.37	4.37	4.37	4.37
Total volume of injected CO ₂ , PV	2.67	3.26	5.32	2.54	3.12	5.13	2.31	2.97	4.88	3.16	3.33
Cumulative water production, $\times 10^{-5}$ m ³	10.7	10.3	12.0	9.40	9.34	10.8	9.18	8.99	9.09	10.2	8.85
Irreducible water saturation S_{wi}	0.270	0.298	0.189	0.388	0.392	0.293	0.456	0.442	0.436	0.329	0.410
End point of relative permeability to CO ₂ k_{rg}^0	0.015	0.029	0.031	0.022	0.029	0.029	0.066	0.053	0.063	0.029	0.073
Water injection : Imbibition process											
Flow rate of water, $\times 10^{-6}$ m ³ /min	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00
Total volume of injected water, PV	2.36	2.32	2.34	2.25	2.25	2.25	2.07	2.14	2.14	2.27	2.30
Cumulative gas production, $\times 10^{-2}$ Sm ³	3.37	2.33	1.60	3.00	2.40	1.63	2.75	2.19	1.42	2.50	2.22

さ 200mm のステンレス製管型容器（最高使用温度 50℃，耐圧 15MPa）に砂を充填したものを模擬帯水層（以下，サンドバック）として用いた。容器は垂直に設置され，CO₂ および水はサンドバックの上端より注入され，下端より排出される。CO₂ の注入には，内容積 1000cm³，耐圧 15MPa のステンレス製注入シリンダーを用い，シリンダーの下部より高圧の水を注入することで，プランジャーポンプの設定値に対応した流量での超臨界 CO₂ のサンドバックへの注入を可能とした。水はプランジャーポンプを用いて，直接にサンドバックに注入される。流体の注入に伴いサンドバックに生じる差圧の測定には，差圧変換器を用いた。実験圧力（出口圧力）は背圧弁を用いて所定の値に制御し，サンドバックからの CO₂ および水の排出量の測定には，ガスメーターと電子天秤を用いた。容器は，ウォーターバス内に設置され，恒温水循環装置により所定の実験温度に保持される。

砂粒子の表面は一般的に親水性の傾向を示すため，CO₂ と水との混相流動条件では，CO₂ が非濡れ相として取り扱われる。実験は，1) CO₂ の注入による水の置換（排出過程），2) 水の注入による CO₂ の置換（吸収過程）の順に行った。これは，相対浸透率算出のための非定常法の手順に従ったものであり，多孔質体における混相流動挙動評価のための一般的な手法である。まず，水飽和条件でサンドバックを作成し，所定の圧力にサンドバックを加圧した上で，室温条件で絶対浸透率の測定を行う。続いて，所定の実験温度に調整した後，超臨界 CO₂ の注入を開始する。CO₂ の注入は出口より水が排出しなくなるまで継続し，その時排出された水量から不動水飽和率 S_{wi} を求める。また，CO₂ 注入終了時点の差圧の測定値 ΔP [Pa] から，次式により不動水飽和状態に対応した CO₂ の相対浸透率 k_{rg}^0 [-] を求める¹⁹⁾。

$$k_{rg}^0 = \frac{Q_g L}{A} \cdot \frac{\mu_g}{K} \cdot \frac{2P_{outlet}}{(P_{outlet} + \Delta P)^2 - (P_{outlet})^2} \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで， Q_g ：実験の温度・圧力条件下での CO₂ の排出レート [m³]， A ：サンドバックの断面積 [m²] (=1.96×10⁻³)， L ：サンドバックの長さ [m] (=0.200)， μ_g ：CO₂ の粘度 [Pa×s]， K ：絶対浸透率 [m²]， P_{outlet} ：背圧弁により制御された実験圧力 [Pa] である。 k_{rg}^0 は CO₂ の相対浸透率曲線のエンドポイント値として定義され， S_{wi} と共に後述の室内実験のシミュレーションに直接用いられる。その後，この不動水飽和状態のサンドバックに対して水注入による CO₂ の置換を開始し，CO₂ 注入時と同様に差圧および流体の

排出レートに関するデータを取得した。なお，水注入に伴い水相への CO₂ の溶解が生じるため，残留 CO₂ 飽和率 S_{gr} [-] に関しては，シミュレーションを通じて値を推算することとした。

実験条件を Tabel 1 に示す。貯留サイトの地層を構成する粒子の粒度は多岐にわたるため，本研究では粒度の異なる 3 種類の砂（豊浦砂（平均粒径 D_A ：200 μm ），7 号珪砂 (D_A ：180 μm)，8 号珪砂 (D_A ：115 μm)）を用い，超臨界 CO₂ と水との混相流動挙動に及ぼす粒度の影響について検討した。また，地温勾配により深度に依存して地層の温度が変化するため，実験温度を 30，40，50℃ の 3 段階に変化させた。実験圧力は 10MPa で一定であり，CO₂ の臨界点は 31.2℃，7.38MPa であることから，40℃および 50℃の条件が超臨界状態での CO₂ 注入プロセスに該当する。CO₂ および水の注入レートはそれぞれ 4.37×10⁻³kg/min，5.00×10⁻⁶m³/min に設定し，両プロセスともに注入は 70 分間継続した。

本実験における CO₂ 排出量測定の精度について，実験 9（8 号珪砂，50℃）の結果を一例として紹介する。CO₂ の注入レート (4.37×10⁻³kg/min) および注入時間 (70min) より，累計 CO₂ 注入量は標準状態換算で 0.156m³ となる。一方，CO₂ 注入プロセス，水注入プロセス，実験終了後の圧力解放時の CO₂ 排出量はそれぞれ 0.133 m³，0.0194 m³，0.00358 m³ であり，配管等のスペースも含む装置全体でのマスバランス（注入／排出）を計算すると 1.000 (=0.156 / (0.133+0.0194+0.00358)) となり，十分な測定精度が確保されている。水排出量の測定の精度に関しても，水飽和状態でのサンドバックに所定流量で水を注入した際に，ポンプの流量の設定値と排出量との対応を確認している。

2・2 実験結果

(1) CO₂ 注入プロセスにおける流動および圧力挙動

CO₂ 注入プロセスに関する実験結果の一例として，実験 9（8 号珪砂，50℃）の結果について述べる。Fig. 2 に CO₂ 注入プロセスにおける CO₂ および水の流動挙動ならびに差圧の変化について示す。排出流体中の水の体積割合を表すウォーターカットは，注入の開始直後は 100% に維持されており，この段階での累計水排出量を線形近似することで得られる水の排出レートは 9.38×10⁻⁶m³/min であった。一方，50℃，10MPa における CO₂ の密度 3.84×10²kg/m³ を用いると CO₂ の体積注入レートは 1.14×10⁻⁵m³/min に換算され，両レートの比較から，注入 CO₂ の約 17.5% が水相に溶解していることが分かった。CO₂ の累計注入量が 0.565PV (Pore volume) に達した時点で，注入 CO₂ のフロント

Fig.2 Flow behavior of supercritical CO₂ and water and change of differential pressure with time during CO₂ injection process (Run9, No.8 silica sand, 50°C).

がサンドバックの流出端に到達し、CO₂の排出が開始されている。初期段階で孔隙内は水飽和の状態にあり、CO₂注入に伴う水の排出には高い圧力勾配を要することになる。ゆえに差圧は注入開始直後に著しく上昇し、約 10.5kPa に保持された後、CO₂の排出の開始とともに急激に低下する挙動を示した。その後、孔隙内の水の排出が進行し、不動水飽和状態に近づくにつれて流動可能な流体は CO₂ だけになり、最終的に差圧は約 3.65kPa で一定となった。なお、この時の水の排出量は $90.9 \times 10^{-6} \text{m}^3$ であり、 S_{wi} として 0.436 を得た。また、CO₂の相対浸透率曲線のエンドポイント値 k_{rg}^0 は、式 (1) に基づき 0.063 と算出された。

Fig. 2 に示した一連の挙動は、他の条件に関しても同様に観察された。しかし Fig. 3 に示すように、 S_{wi} の値には、砂の粒度と温度に依存した顕著な違いが認められた。 S_{wi} が小さい場合には、孔隙内からの水の排出量の増加に起因して、CO₂の貯留効率は増大する。また、 S_{wi} は相対浸透率曲線における CO₂ と水との混相流動条件を規定する重要なパラメータでもある。図より、砂の平均粒径 D_A が小さくなるにつれて、 S_{wi} は徐々に上昇していく傾向を示し、その値は 0.298 から 0.442 まで変化した。その要因としては、1) 粒子が細くなるにつれて、砂粒子と水との接触面積が増加するため、マトリックスの親水性の傾向が強まること、2) 粒子が細かいほど孔隙径が小さくなり、結果として毛管圧力の影響が増大し、水に対して CO₂ が相対的に流れ易くなる、等が挙げられる。一方、温度依存性に関しては、温度の上昇とともに S_{wi} は徐々に低下する傾向を示した。その傾向は粒度が粗い方が顕著であり、豊浦砂 ($D_A=200\mu\text{m}$) の場合、50°C では 0.189 まで低下している。水と CO₂ の粘性比は、12.0 (30°C)、13.7 (40°C)、19.3 (50°C) であり、温度の上昇とともに大きく異なる。ゆえに、粘性の変化という観点では、温度の上昇とともに CO₂ に対して水の流動性は低下することになり、観察された S_{wi} の低下を説明することができない。また、CO₂ の密度は 772kg/m^3 (30°C)、 629kg/m^3 (40°C)、 384kg/m^3 (50°C) と温度の上昇とともに著しく減少するが、8 号珪砂を用いた条件において、 S_{wi} の値は 30°C で 0.456、50°C で 0.436 と、それ程大きな変化は認められず、本実験装置の鉛直方向の流動場において、水と CO₂ との密度差が S_{wi} の変化に及ぼす影響も小さい。ゆえに、温度上昇に伴う S_{wi} の低下は、CO₂ と水との相対浸透率の変化に起因

Fig.3 Dependences of sand grain diameter D_A and temperature on irreducible water saturation S_{wi} .

したものであり、粒度が粗い場合にその影響が特に顕著であったと言える。次章の室内実験の数値シミュレーションでは、粒度ならびに温度の違いによる相対浸透率の変化に関して考察を加えることとするが、孔隙内での超臨界 CO₂ と水との微視的な界面状態が流動挙動に及ぼす影響については、引き続き検討を進めることが重要である。

(2) 水注入プロセスにおける流動および圧力挙動

CO₂ 注入プロセスと同様に、実験 9 (8 号珪砂, 50°C) において水注入プロセスに関して得られた結果を Fig. 4 に示し、一連の挙動について説明する。図より、流体の排出挙動は Fig. 2 に示した CO₂ 注入プロセスにおけるそれと逆になり、ウォーターカットは初期段階では 0% に保持され、サンドバックからは CO₂ のみが排出されている。この時 CO₂ の排出レートは、実験の温度・圧力条件下では $4.95 \times 10^{-6} \text{m}^3/\text{min}$ に換算され、水の注入レートと概ね一致している。その後、累計水注入量が 0.248PV に達した時点で、注入水のフロントが流出端に到達し、水の排出が開始される。この段階での孔隙内の飽和状態は残留 CO₂ 飽和率 S_{gr} に近い状態にあり、流動可能な CO₂ の排出は概ね完了しているため、以降は水とともに溶解状態の CO₂ の排出が継続する結果が得られた。圧力挙動に関しては、CO₂ の置換が進行してサンドバック内の水の流動が支配的になるのに伴い、CO₂ と水との粘度差に起因して

Fig.4 Flow behavior of supercritical CO₂ and water and change of differential pressure with time during water injection process (Run9, No.8 silica sand, 50°C).

差圧は徐々に上昇していく。注入水のフロントが流出端に到達した時点で差圧は 3.95kPa のピーク値を示し、以降は残留 CO₂ の水相への溶解の進行に伴い、相対浸透率 k_{rw} を 1 とする水の単相流動条件がサンドバックの上流側より形成されるため、差圧は徐々に低下していく挙動が観察された。なお、他の条件についても流動挙動や差圧の変化に関して同様の挙動が得られている。先に述べたように、 S_{gr} に関しては、数値シミュレーションによるヒストリーマッチングを通じて値を推算し、その粒度や温度依存性について検討する。

3. 数値シミュレーションによる ヒストリーマッチングを通じた超臨界 CO₂－水 混相流動条件における相対浸透率曲線の定式化と最適化

前章で示した室内実験の結果に基づく数値シミュレーションを実施し、流体の流動挙動や差圧の変化に関するヒストリーマッチングを通じて、超臨界 CO₂－水混相流動条件における相対浸透率曲線の定式化と最適化を図った。数値シミュレーションのための解析プログラムとしては、米国・ロスアラモス国立研究所 (LANL) において開発された、FEHM (Finite Element Heat and Mass Transfer Code)²⁰⁾ を用いた。このコードは LANL において現在開発中の CO₂ 地中貯留のリスク評価を目的としたソフトウェア「CO₂-PENS」のベースプログラムであり、産総研と LANL との国際共同研究の一環として、当研究所でも使用している。なお、このコードのオリジナルは、有限要素法による地熱貯留層解析のために開発されたものであるが、注入 CO₂ の地中環境における時空間的な分布の予測を目的として、貯留サイトの温度・圧力条件に依存して生じる CO₂ の相変化や、CO₂ の水相への溶解現象を考慮に入れ、ガス状 CO₂、液体状 CO₂ (超臨界 CO₂)、水の 3 相系へと拡張されている²¹⁾。

3・1 支配方程式

Table1 に示したように、実験は CO₂ の相変化が生じない一定の温度・圧力条件下で実施したため、ガス状 CO₂ の質量収支式とエネルギー収支式は計算上無視される。水相に溶解した CO₂ は水相中の成分として移流と拡散により移動し、時間とともにその濃度が変化する。以下に液体 CO₂ 相 (超臨界 CO₂ 相)、水相、溶解 CO₂ 成分の質量収支式を示す。

$$\nabla \cdot \left(\frac{K k_{rg}}{\mu_g} \rho_g \nabla \Phi_g \right) + (q_{gi} - q_{gp}) = \frac{\partial (\phi \rho_g S_g)}{\partial t} \quad (2)$$

水相；

$$\nabla \cdot \left(\frac{K k_{rw}}{\mu_w} \rho_w \nabla \Phi_w \right) + (q_{wi} - q_{wp}) = \frac{\partial (\phi \rho_w S_w)}{\partial t} \quad (3)$$

水相－溶解 CO₂ 成分

$$\begin{aligned} & \nabla \cdot \left(x_g \frac{K k_{rw}}{\mu_w} \rho_w \nabla \Phi_w \right) + \nabla \cdot [D_g \nabla (x_g \phi \rho_w S_w)] - x_g \cdot (q_{wi} - q_{wp}) \\ & = \frac{\partial (x_g \phi \rho_w S_w)}{\partial t} \quad (4) \end{aligned}$$

3・2 解析領域および境界条件

解析領域は z 方向の 1 次元とした。サンドバックのスケールに対応させて、解析領域の断面積と長さはそれぞれ $1.96 \times 10^{-3} \text{m}^2$ 、0.200m とし、長さ方向に 40 個のブロックを配置した。境界条件としては、解析領域の上流端ブロックに所定の CO₂ および水の質量流速を与えると同時に、下流端ブロックは定圧境界として取

扱い、実験における背圧弁による制御圧力を境界圧力値として与えた。

なお、実験における差圧の測定値は、超臨界 CO₂ と水との混相流動に伴い生じる毛管圧力の影響を含んだ値であるのに対し、計算では便宜上、解析領域の注入端および排出端ブロックの水相圧力の計算値から差圧を求めることとした。

3・3 相対浸透率、毛管圧力モデル

多孔質体における混相流動挙動の解析を目的とした相対浸透率、毛管圧力モデルとしては、Brooks and Corey model (以下、BC モデル)²²⁾ が広く用いられている。BC モデルでは、まず、不動水飽和率 S_{wi} 、残留 CO₂ 飽和率 S_{gr} を用い、次式により水飽和率 S_w の正規化を行う。

$$S_w^* = \frac{S_w - S_{wi}}{1 - S_{gr} - S_{wi}} \quad (5)$$

正規化された水飽和率 S_w^* を用い、CO₂ および水の相対浸透率 k_{rg} 、 k_{rw} は次式により算出される。

$$k_{rg} = k_{rg}^0 \cdot (1 - S_w^*)^2 \left[1 - (S_w^*)^{1 + \frac{2}{\lambda}} \right] \quad (6)$$

$$k_{rw} = k_{rw}^0 \cdot (S_w^*)^{3 + \frac{2}{\lambda}} \quad (7)$$

また、毛管圧力 P_c [Pa] は、次式により表される。

$$S_{wc}^* = \frac{S_w - S_{wi}}{1 - S_{wi}} \quad (8)$$

$$P_c = P_d \cdot (S_{wc}^*)^{-\frac{1}{\lambda}} \quad (9)$$

ここで、 P_d [Pa] は置換圧力であり、非濡れ相 (CO₂) の注入による濡れ相 (水) の置換 (排出過程) において、非濡れ相が浸透し始める圧力を表す。 λ は孔隙径分布に依存した次数 (Pore size distribution index) である。 P_d は水の界面張力 σ [N/m]、接触角 θ [rad]、サンドバックの主孔隙径 d [m] を用い、次式により関連付けられる²³⁾。

$$P_d = \frac{4\sigma \cos \theta}{d} \quad (10)$$

Minagawa ら²⁴⁾ は、水銀ポロシメータにより、豊浦、7 号、8 号の各砂により作成したサンドバックの孔隙径分布を測定し、主孔隙径の値としてそれぞれ 56 μm (豊浦)、40 μm (7 号)、23 μm (8 号) を得ている。また、砂岩の接触角は 1.23rad. 前後と報告されている²⁵⁾。30℃から 50℃の温度範囲での水の界面張力は 67.9 から 71.2 N/m である²⁶⁾ ことから、本実験で用いた各砂に関する P_d の値は、式 (10) によりそれぞれ 1.65kPa (豊浦)、2.30kPa (7 号)、4.00kPa (8 号) と算出される。

式 (5) から式 (9) による BC モデルでは、 λ 値に依存して相対浸透率と毛管圧力が連動して変化する。ヒストリーマッチングに先立ち、相対浸透率と毛管圧力を計算上独立の取扱いと、流動挙動および差圧の変化に及ぼす相対浸透率、毛管圧力の影響を予備的に検討することとした。検討に当たっては、毛管圧力による影響が顕著な CO₂ 注入プロセスを対象として、Fig. 2 に示した実験 9 (8 号珪砂、50℃) を一例として取り扱う。Fig. 5 に計算に用いた相対浸透率曲線ならびに毛管圧力曲線を示す。相対浸透率曲線としては、式 (6) と (7) で示した BC モデルにおける λ の値を 2 に設定することにより一般化された Corey モデル²⁷⁾ を用いた。

Fig. 5 Relative permeability curve and capillary pressure curve for preliminary numerical analysis on CO₂ injection process.

$$k_{rg} = k_{rg}^0 \cdot (1 - S_w^*)^2 \left[1 - (S_w^*)^2 \right] \dots\dots\dots (11)$$

$$k_{rw} = k_{rw}^0 \cdot (S_w^*)^4 \dots\dots\dots (12)$$

式 (5), (8), (11) における S_{wi} , k_{rg}^0 は実測値に基づき, それぞれ 0.436, 0.063 に設定した。一方, CO₂ を注入する排出過程であるため, S_{gr} , k_{rw}^0 はそれぞれ 0, 1 とした。計算条件として, 式 (9) の λ 値を 0.5, 1.0, 2.0 の 3 段階に変化させるとともに, $P_d=0$ として毛管圧力の影響を無視した場合の計算を実施し, 実験と計算結果を比較した。Fig. 6 に CO₂ および水の流動挙動ならびに差圧の変化に関する予備的解析結果を示す。 λ 値が小さいほど, 水飽和率 S_w の低下に伴い著しく毛管圧力が上昇するため, CO₂ 注入による水の排出に高い圧力勾配を要することになる。図より, 差圧のピーク値は 20.8kPa ($\lambda=0.5$), 14.6kPa ($\lambda=1.0$), 12.2kPa ($\lambda=2.0$) と λ 値が小さいほど大きくなっている。また, 実験では CO₂ の累計注入量が 0.565PV に達した時点で CO₂ の排出が開始されているが, 計算では 0.354PV ($\lambda=0.5$), 0.392PV ($\lambda=1.0$), 0.424PV ($\lambda=2.0$) と早く, λ 値が小さいほどその傾向は顕著であり, 水の排出水量に関する計算結果はどの条件についても実験のそれと比較して少ないという結果となった。排出水量の少なさに起因して, CO₂ の排出が開始された以降も計算では孔隙内の S_w が高く, CO₂ の相対浸透性が低い状態にあるため, 実験と比較して差圧は高く保持されている。しかし, 毛管圧力の考慮の有無に関わらず, 流体の流動挙動や累計の排出量に大きな差異はなく, 本実験における CO₂ の注入条件では, 毛管圧力が圧力挙動に及ぼす影響が大きいに対して, 流体の排出挙動に対しては毛管圧力よりも相対浸透率が支配的なパラメータであることが判明した。すなわち, 式 (11), (12) で表される Corey モデルでは, S_w の高い条件において, k_{rg} を過大に評価し, 逆に k_{rw} を過小に評価していることになる。

そこで本研究では, 相対浸透率と毛管圧力の独立の取扱いをそのままに, 従来の Corey モデルに対して, 次式のように次数 N_{krig} , N_{krw} を導入し, 相対浸透率曲線の形状を変化させることで, 流動挙動や差圧の変化のマッチングを行い, 曲線の形状の最適化を図ることとした。

$$k_{rg} = k_{rg}^0 \cdot (1 - S_w^*)^{N_{krig}} \left[1 - (S_w^*)^2 \right] \dots\dots\dots (13)$$

$$k_{rw} = k_{rw}^0 \cdot (S_w^*)^{N_{krw}} \dots\dots\dots (14)$$

Fig. 6 Comparison of experimental and calculation results for cumulative fluid discharge and differential pressure during CO₂ injection process in the case of different capillary pressure curves.

なお, CO₂ 注入プロセスのマッチングのための毛管圧力曲線には, λ の値を 2.0 に固定したものをを用いることにした。これは予備的解析において λ の値を 2.0 とした場合, 注入の初期段階における圧力挙動に関して, 実験に最も近い結果が得られたことによる。一方, 排出過程と比較して吸収過程では毛管圧力の影響が小さいという一般的な挙動を考慮に入れ, 水注入プロセスに関してはどの条件についても P_d と λ をそれぞれ 0.10kPa, 1.0 に設定することとした。

3・3 CO₂ 注入プロセスのヒストリーマッチングと相対浸透率曲線の形状の最適化

(1) ヒストリーマッチングプロセス

Fig. 2 に示した実験 9 (8 号珪砂, 50 °C) の結果を一例として, 式 (13), (14) による拡張 Corey モデルを用いた CO₂ 注入プロセスのヒストリーマッチングプロセスについて述べる。Fig. 6 より, 式 (11), (12) による Corey モデルでは, 初期の S_w が高い条件での水の相対浸透性を過小評価しており, CO₂ の累計注入量が 3PV に達した時点での水排出量は, 実験の $8.86 \times 10^{-5} \text{m}^3$ に対して, $7.30 \times 10^{-5} \text{m}^3$ 前後と少ない結果となった。そこで, Fig. 7 に示すように, k_{rg} には次数 N_{krig} を 2.0 とする Corey モデルをそのまま使い, k_{rw} の次数 N_{krw} を 1.0 から 4.0 の 4 段階に変化させて計算を実施し, 最初に水の排出挙動を指標としたマッチングを図った。Fig. 8 に CO₂ および水の累計排出量ならびに差圧の経時変化に関する実験と計算の比較を示す。Fig. 7 より次数 N_{krw} が小さくなるにつれて, S_w の高い条件で水の相対浸透性が増大する。結果として, 注入 CO₂ がサンドバックの流出端に到達するタイミングが, N_{krw} 値に依存して 0.424PV ($N_{krw}=4.0$) から 0.496 PV ($N_{krw}=1.0$) のように遅くなっている。 N_{krw} が 1.0 の場合, S_w が低い条件でも水の相対浸透性が高く, CO₂ の排出が開始され

Fig. 7 Comparison of relative permeability curves in the case of different N_{krw} values for history matching of CO₂ injection process.

Fig. 9 Comparison of relative permeability curves in the case of different N_{krg} values for history matching of CO₂ injection process.

Fig. 8 Comparison of experimental and calculation results for cumulative fluid discharge and differential pressure during CO₂ injection process in the case of different N_{krw} values.

Fig. 10 Comparison of experimental and calculation results for cumulative fluid discharge and differential pressure during CO₂ injection process in the case of different N_{krg} values.

た 0.496 PV 以降も水の排出レートが高く維持されている。孔隙内は 1.38PV の時点で不動水飽和状態に達し、孔隙内を CO₂ のみが流動する状態にあるため、差圧も 3.56kPa で一定となった。しかし、実験では CO₂ の排出が開始された以降も水の排出は若干ながらも継続し、差圧も徐々に低下していく挙動が観察されており、 N_{krw} を 1.0 とした場合、水の流動性を逆に過大に評価していることになる。CO₂ の排出挙動は水のそれと対応しているため、実験と計算との比較から、 N_{krw} を 2.0 とした場合に CO₂ および水の排出挙動を最も良く再現できることが判明した。

しかし、CO₂ 注入初期の水の主置換過程における差圧の計算結果は、実験と比較して低い。これは、次数 N_{krg} を 2.0 とする

Corey モデルが、 S_w が高い条件での CO₂ の相対浸透性を過大に評価していることに起因している。そこで、Fig. 9 のように N_{krw} を 2.0 に固定した上で、 N_{krg} を先の計算で用いた 2.0 に対して、CO₂ の相対浸透性を低くする方向で 3.0 と 4.0 に変化させた計算を実施し、差圧の変化を指標としたマッチングを図った。この計算結果と実験との比較を Fig. 10 に示す。図より、 N_{krg} が大きくなっても流体の排出挙動には大きな差異は認められない。一方、差圧のピーク値はそれぞれ 8.69kPa ($N_{krg}=2.0$)、10.1kPa ($N_{krg}=3.0$)、11.4kPa ($N_{krg}=4.0$) であり、 N_{krg} の増加とともに高くなっている。実験と計算との比較から、 N_{krg} を 4.0 とした場合に、1) CO₂ 注入に伴う初期段階での著しい上昇や、2) 注入 CO₂ が流出端に到達した以降の低下といった、CO₂ 注入プロセスにおける差圧の変

Fig.11 The results of history matching for cumulative fluid discharge and differential pressure during CO₂ injection process in the case of different sand grain diameter D_A and temperature.

化に関する一連の挙動が再現されている。以上のように、一例とした実験 9 (8 号珪砂, 50°C) に関しては、拡張 Corey モデルにおける次数 N_{krg} と N_{krw} をそれぞれ 4.0 と 2.0 に設定した場合の相対浸透率曲線が、CO₂ 注入プロセスにおける CO₂ と水との混相流動挙動や差圧の変化を定量的にも再現する上で最適化されたものと言える。

(2) CO₂ 注入プロセスにおける相対浸透率曲線の砂粒度ならびに温度依存性

砂の粒度や温度の異なる条件に関して、(1) で示したプロセスに従い、相対浸透率曲線の形状を変化させることで流体の排出挙動や差圧の変化のヒストリーマッチングを図った。Fig. 11 に CO₂ 注入プロセスのマッチング結果を示し、一連の挙動の砂粒度ならびに温度依存性について検討する。

砂粒度依存性に関しては、温度を 50°C とした実験 3, 6, 9 の結果を比較する。実験では、1) 粒度が細くなるにつれて、絶対浸透率が小さくなるとともに、毛管圧力の影響が増大するため、CO₂ 注入による水の排出に高い圧力勾配を要することになり、特に注入初期の差圧が高くなる、2) 粒度が粗い場合には S_{wi} が小さくなるため、サンドバックからの水の排出量が多くなる結果が得られ、結果としてサンドバックからの CO₂ 排出の開始が遅くなる等の挙動の違いが観察されている。Fig. 12 にマッチングに用いた相対浸透率曲線の比較を示す。各条件に関して次数 N_{krg} と N_{krw} をそれぞれ、4.0 と 2.0 (実験 3 (豊浦)), 5.0 と 2.0 (実験 6 (7 号)), 4.0 と 2.0 (実験 9 (8 号)) に設定した場合に、粒度の違いによる CO₂ 注入プロセスにおける一連の挙動を定量的にも再現できることが判明した。曲線の比較から、粒度が粗い場合には、 S_w が低い条件においても、CO₂ に対して水の相対浸透性

Fig.12 Optimized relative permeability curves for CO₂ injection process through series of numerical analysis. Dependence of sand grain diameter D_A on the shapes of relative permeability curves.

が高いという流動挙動と曲線の形状との相関が示唆され、CO₂ の注入圧力と孔隙内に保持される CO₂ 量という観点から、CO₂ の貯留効率が高くなることが分かった。

温度依存性に関しては、7 号珪砂を用いた実験 4 から実験 6 の結果を比較する。実験では、1) S_{wi} の温度による変化に依存して、実験 5 (50°C) では CO₂ 排出の開始が 0.818PV と遅く、注入終了時の水排出量が $10.8 \times 10^{-5} \text{ m}^3$ (50°C) と他の条件と比較して著しく多い、2) 実験 4 (30°C) では、CO₂ 排出の開始直後に顕著な差圧の低下が認められず、孔隙内の飽和条件の変化に依らず、

Fig.13 Optimized relative permeability curves for CO₂ injection process through series of numerical analysis. Dependence of temperature on the shapes of relative permeability curves.

概ね値が3から4kPaの範囲で推移している等の挙動の違いが観察されている。とりわけ、差圧の変化の比較からは、CO₂の臨界温度31.2℃を境にして、CO₂と水との混相流動挙動が大きく変化することが示唆された。Fig. 13にマッチングに用いた相対浸透率曲線の比較を示す。各条件に関して次数 N_{krw} と N_{krg} をそれぞれ、1.0と2.4(30℃)、5.0と2.0(40℃)、5.0と2.0(50℃)に設定した場合に、温度の違いによるCO₂注入プロセスにおける一連の挙動を定量的にも再現できることが判明した。図より、30℃と40℃では S_{wi} の値にそれ程違いが認められないが、曲線の形状は大きく異なっており、30℃では S_w の高い条件でのCO₂の相対浸透性が他の条件と比較して著しく高くなっている。すなわち、温度が低い場合には、注入されたCO₂が容易に地層内を拡散するのにに対し、超臨界状態(40℃と50℃)では、温度の上昇とともに水の相対浸透性が高くなるため、孔隙内に保持されるCO₂量が増加する。ゆえに、CO₂の注入圧力の観点からのプロセスの効率、温度が低い方が高くなる。一方、孔隙内の水の置換は温度が高い場合に促進されるため、CO₂の地層内での拡散を抑制するという点においては、超臨界状態での注入が有利であることが示唆された。

なお、CO₂の物性の変化が流動挙動に及ぼす影響については、現状では相対浸透率曲線の形状の違いに反映された形となっている。これらは、超臨界CO₂と水との混合状態や、2相間の孔隙スケールでの相互作用に起因した現象と推察されるため、学術的な観点から、また数学モデルの改良を念頭において、引き続き検討を進めることとする。

3・4 水注入プロセスのヒストリーマッチングと相対浸透率曲線の形状の最適化

(1) ヒストリーマッチングプロセス

CO₂注入プロセスと同様に、Fig. 4に示した実験9(8号珪砂、50℃)の結果を一例として、式(13)、(14)による拡張Coreyモデルを用いた水注入プロセスのヒストリーマッチングプロセスについて述べる。実験手順に対応させて、Fig. 11に示したCO₂注入プロセスの最終的な計算結果を、引き継ぎ計算により水注入プロセスの初期条件として用いた。マッチングに当たり S_{wi} および k_{rg}^0 は、CO₂注入プロセスの実験およびマッチング結果に基づき設定し、 S_{gr} 、 k_{rw} 、また次数 N_{krg} と N_{krw} を変化させた。

まず、Fig. 14に示すように相対浸透率曲線として式(11)と(12)によるCoreyモデルを用い、 S_{gr} を0.0から0.3の4段階に変

Fig.14 Comparison of relative permeability curves in the case of different residual CO₂ saturation S_{gr} for history matching of water injection process.

Fig.15 Comparison of experimental and calculation results for cumulative fluid discharge and differential pressure during water injection process in the case of different residual CO₂ saturation S_{gr} .

化させた計算を実施し、CO₂の排出挙動を指標としたマッチングを図った。図より、 k_{rg} は S_{gr} の上昇とともに S_w の低い方向にシフトするのにに対し、 k_{rw} は S_{gr} に依らず一定である。Fig. 15に S_{gr} が異なる場合の流体の累計排出量ならびに差圧の経時変化に関する実験と計算の比較を示す。実験では、累計水注入量が0.248PVに達した時点で水の排出が開始されているのに対し、 S_{gr} が0.0の場合は0.451PVであり、実験との差異が大きい。また、この段階での孔隙内の飽和状態は S_{gr} に近い状態にあり、流動可能なCO₂の排出は概ね完了しているため、以降は水とともに溶解状態のCO₂の排出が継続することになる。 S_{gr} が0.0の場合は、注入水による置換効果により残留したCO₂量が少なく、1.71PVの時

Fig.16 Comparison of relative permeability curves in the case of different values of endpoint on relative permeability to water k_{rw}^0 for history matching of water injection process.

点で CO₂ の排出は概ね完了するという実験との違いが示された。水の排出挙動は CO₂ のそれに対応しているため、 S_{gr} が高くなるにつれて注入水が流出端に到達する時間が早くなっており、実験と計算との比較から、 S_{gr} を 0.30 に設定した場合に、CO₂ および水の排出挙動を最も良く再現できることが判明した。

しかし、差圧のピーク値は、実験の 3.94kPa に対して、3.83kPa ($S_{gr}=0.0$)、6.50kPa ($S_{gr}=0.1$)、13.5kPa ($S_{gr}=0.2$)、40.0kPa ($S_{gr}=0.3$) と、 S_{gr} が小さくなるにつれて高くなっている。とりわけ、排出挙動が概ね一致した $S_{gr}=0.3$ の条件では、実験に対して約 10 倍もの差異が生じている。この要因としては、水注入プロセスにおける水の相対浸透性を過小評価したことが挙げられる。そこで、 S_{gr} を 0.3 に固定した上で、Fig. 16 のように k_{rw}^0 を先の計算で用いた 0.046 に対して、水の相対浸透性を高める方向で 0.250、0.375、0.500 の 3 段階に変化させた計算を実施し、差圧の変化を指標としたマッチングを図った。この計算結果と実験との比較を Fig. 17 に示す。図より、 k_{rw}^0 が大きくなっても流体の排出挙動には大きな差異は認められない。一方、差圧のピーク値は k_{rw}^0 を 0.046 とした場合の 40.0kPa から、10.1kPa ($k_{rw}^0=0.250$)、7.45kPa ($k_{rw}^0=0.375$)、6.08kPa ($k_{rw}^0=0.500$) のように、 k_{rw}^0 が大きくなるにつれて低くなる結果が得られた。 k_{rw}^0 を 0.500 とした場合に、1) 初期段階での CO₂ と水との粘度差に起因した上昇、2) 注入水が流出端に到達した以降の CO₂ の水相への溶解に伴う低下といった、水注入プロセスにおける差圧の変化に関する一連の挙動が再現されている。なお、一例とした実験 9 (8 号珪砂、50℃) に関しては、最終的に $S_{gr}=0.290$ 、 $k_{rw}^0=0.460$ 、 $N_{krw}=1.0$ 、 $N_{krw}=4.0$ の値を用いることで、水注入プロセスにおける CO₂ と水の混相流動挙動や差圧の変化を定量的にも再現することができた。

(2) 水注入プロセスにおける相対浸透率曲線の砂粒度ならびに温度依存性

砂の粒度や温度の異なる条件に関して、(1) で示したプロセスに従い、相対浸透率曲線の形状を変化させることで流体の排出挙動や差圧の変化のヒストリーマッチングを図った。Fig. 18 に水注入プロセスのマッチング結果を示し、一連の挙動の砂粒度ならびに温度依存性について検討する。

砂粒度依存性に関しては、温度を 50℃ とした実験 3、6、9 の結果を比較する。実験 3 (豊浦) と実験 6 (7 号) の比較からは、1) 砂の粒度に依存して S_{wi} が変化するため、初期の CO₂ 飽和率に違いがあるにもかかわらず (豊浦 : 0.811、7 号 : 0.707)、

Fig.17 Comparison of experimental and calculation results for cumulative fluid discharge and differential pressure during water injection process in the case of different values of endpoint on relative permeability to water k_{rw}^0 .

CO₂ の排出挙動に関して両者の間にそれ程違いが認められない、2) 7 号に対して豊浦の方が絶対浸透率が大きいにもかかわらず (豊浦 : 13.5 μm^2 、7 号 : 9.21 μm^2)、豊浦の方が実験を通じて差圧が高い、等の粒度依存性に関する特徴的な挙動が観察されている。各条件に関して S_{gr} 、 k_{rw}^0 、 N_{krw} および N_{krw} を以下のように設定することで、Fig. 18 のように水注入プロセスにおける一連の挙動を再現することができた。

実験 3 (豊浦) ;

$S_{gr}=0.440$, $k_{rw}^0=0.090$, $N_{krw}=1.25$, $N_{krw}=2.50$

実験 6 (7 号) ;

$S_{gr}=0.305$, $k_{rw}^0=0.300$, $N_{krw}=1.50$, $N_{krw}=2.00$

実験 9 (8 号) ;

$S_{gr}=0.290$, $k_{rw}^0=0.460$, $N_{krw}=1.00$, $N_{krw}=4.00$

Fig. 19 にマッチングに用いた相対浸透率曲線の比較を示す。曲線の比較から、CO₂ 注入が完了した以降の砂粒度に依存した CO₂ の移動現象は次のように解釈される。 S_w が低い場合、粒度が細かいほど水に対して CO₂ の相対浸透性が高くなる。一方、 k_{rw}^0 値はそれぞれ 0.090 (豊浦)、0.300 (7 号)、0.460 (8 号) であり、粒度が細くなるほど k_{rw}^0 値は大きくなっており、 S_w が高い条件では著しく水の相対浸透性が高くなる。孔隙内の飽和条件が S_{gr} 以下に達した場合には、CO₂ は流動性を持たず、CO₂ の地層内での拡散に対しては、水の流動に伴う溶解状態の CO₂ の移動の寄与が増大する。ゆえに、得られた相対浸透率曲線の形状からは、粒度が細かい場合に CO₂ が容易に地層内を拡散することが予測される。一方、比重差に起因して、注入 CO₂ の上方への移動や、CO₂ 溶解水の帯水層下部への沈み込みが、時間の経過とともに生じることが想定されるため、絶対浸透率が流動挙動に及

Fig.18 The results of history matching for cumulative fluid discharge and differential pressure during water injection process in the case of different sand grain diameter D_A and temperature.

Fig.19 Optimized relative permeability curves for water injection process through series of numerical analysis. Dependence of sand grain diameter D_A on the shapes of relative permeability curves.

ばす影響も大きいと考えられる。ゆえに、実際の貯留サイトを対象とした数値シミュレーションにおいて注入 CO_2 の時空間分布を予測するに当たり、絶対浸透率と相対浸透率の両者の影響を総合的に評価することが重要である。

温度依存性に関しては、7号珪砂を用いた実験4から実験6の結果を比較する。実験では、温度による CO_2 密度の違いに起因して、温度が低いほど累計 CO_2 排出量が多くなっている。実験5 (40°C) と実験6 (50°C) の比較からは、温度に依存して S_{wi} が変化するため、初期の CO_2 飽和率が40°Cでは0.609、50°Cでは

0.707と違いがあるのにもかかわらず、注入水が流出端に到達するタイミングが0.229PV前後ではほぼ等しいという、温度依存性に関する特徴的な挙動が観察されている。各条件に関して S_{gr} , k_{rw}^0 , N_{krg} および N_{krw} を以下のように設定することで、Fig. 18のように水注入プロセスにおける一連の挙動を再現することができた。

実験4 (30°C) ;

$S_{gr}=0.190$, $k_{rw}^0=0.350$, $N_{krg}=1.00$, $N_{krw}=2.00$

実験5 (40°C) ;

$S_{gr}=0.210$, $k_{rw}^0=0.350$, $N_{krg}=1.50$, $N_{krw}=2.00$

実験6 (50°C) ;

$S_{gr}=0.305$, $k_{rw}^0=0.300$, $N_{krg}=1.50$, $N_{krw}=2.00$

Fig. 20 にマッチングに用いた相対浸透率曲線の比較を示す。図より、温度の上昇に伴い曲線が S_w の低い方向にシフトしている。これは、 CO_2 - 水の2相流動系においては、温度が高い場合にマトリックスの親水性の傾向が弱まり、水が排出され易くなるのに対して、 CO_2 の流動性は低下することを意味している。ゆえに、 CO_2 注入が完了した以降の温度に依存した CO_2 の移動現象は、 S_w が低い条件では温度が低い方が液体 CO_2 (超臨界 CO_2) として地層内を拡散し易いのに対し、 S_{gr} 以下の条件では、温度が高いほど、水の流動に伴う溶解状態の CO_2 の移動の寄与が増大するものと解釈することができる。

Fig. 21 に一連のヒストリーマッチングを通じて得られた S_{gr} の砂粒度および温度依存性を示す。砂の粒度が細かい場合、また温度が低い場合に液体 CO_2 (超臨界 CO_2) としての流動性が高いという、室内実験で観察された挙動を反映した結果となっている。Suekane ら¹⁴⁻¹⁵⁾ は、ベリア砂岩およびガラスビーズを用いて作

Fig.20 Optimized relative permeability curves for water injection process through series of numerical analysis. Dependence of temperature on the shapes of relative permeability curves.

成した充填層を用い、飽和 CO₂ 水溶液の注入による超臨界 CO₂ の置換実験を実施し、 S_{gr} の温度・圧力依存性について検討している。その結果、超臨界域での S_{gr} の実測値は 0.184 ~ 0.278 の範囲であり、温度とともに S_{gr} が上昇し、CO₂ の流動性が低下するという、Fig. 21 示した著者らの結果と同様の傾向を得ている。著者らの S_{gr} の推算値も彼らの結果と同様の範囲内にあり、本研究での実験と数値シミュレーションとを併用することによる、水相への CO₂ の溶解も考慮に入れた S_{gr} の推算手法の有用性が示唆された。

4. 結 言

本研究では、模擬帯水層としてサンドバックを用い、超臨界 CO₂ の注入による水の置換ならびに水の注入による超臨界 CO₂ の置換に関する室内実験を実施した。さらに、室内試験の数値シミュレーションを実施し、実験と計算結果の比較から、CO₂ と水との混相流動挙動を支配する相対浸透率曲線の形状の最適化を図るとともに、混相流動挙動に及ぼす砂粒度や温度の影響について考察した。結果をまとめると以下のようである。

- (1) 超臨界 CO₂ の注入による水の置換ならびに水の注入による超臨界 CO₂ の置換に関する室内実験を実施し、CO₂ 注入プロセスならびに水注入プロセスにおける CO₂ および水の排出レートや注入時の圧力挙動の変化に関する一連のパラメータを取得した。また、室内実験の結果から、超臨界 CO₂ - 水 2 相流動系における不動水飽和率 S_{wi} は、砂の粒度が細かい場合に高くなることや、温度の上昇とともに低下する傾向を明らかにした。
- (2) 室内実験の結果に基づく数値シミュレーションを実施した。相対浸透率モデルとして、従来の Corey モデルに対して次数 N_{krw} , N_{krw} を導入した拡張形を用い、相対浸透率曲線の形状を変化させることで、CO₂ および水の流動挙動や差圧の変化に関するマッチングを図った。シミュレーションにより残留 CO₂ 飽和率 S_{gr} を推算した結果、室内実験で観察された挙動を反映して、砂の粒度が小さい場合、また温度が低い場合に S_{gr} が低くなる結果を得た。
- (3) CO₂ 注入プロセスのヒストリーマッチングを通じて、相対浸透率曲線の形状の最適化を図るとともに、その砂粒度ならびに温度依存性について検討した。曲線の形状の比較から、砂の粒度が粗い場合には、水飽和率 S_w の低い条件においても

Fig.21 Dependences of sand grain diameter D_A and temperature on residual CO₂ saturation S_{gr} .

CO₂ に対して水の流動性が高くなることや、CO₂ の臨界温度 31.2°C を境にして、CO₂ と水との混相流動挙動が大きく変化し、温度がそれ以下の場合に CO₂ の相対浸透性が著しく高くなることを明らかにした。

- (4) 水注入プロセスのヒストリーマッチングを通じて、相対浸透率曲線の形状の最適化を図るとともに、曲線の形状の比較から CO₂ の注入が完了した以降の地層内での CO₂ の移動現象の解釈を進めた。その結果、粒度が細かい場合や温度が低い場合に CO₂ は液体状態で地層内を拡散し易いことや、孔隙内が S_{gr} 以下の条件では、粒度が細かい場合や温度が高い場合に、水の流動に伴う溶解状態で CO₂ の移動の寄与が増大することが分かった。
- 以上のように、多孔質体における超臨界 CO₂ と水との混相流動挙動を定量的に評価する上で、本研究での室内実験と数値シミュレーションとを併用するアプローチは、極めて有効な手法と言える。今後は、貯留サイトとして想定される地質構造より採取されたコアを対して本手法を適用することによるデータの蓄積、さらには最適化された相対浸透率曲線を用いた実規模でのシミュレーションを実施し、注入 CO₂ の地層内における時空間分布の予測が重要な課題となる。

謝辞 本研究の実施に当たり、独立行政法人産業技術総合研究所メタンハイドレート研究センター テクニカルスタッフ 大野孝雄氏、株式会社日本アクシス 永瀬茂紀氏には多大なる協力をいただいた。以上の方々に厚くお礼申し上げます。

References

- 1) R. Arts et al.: Geological Society Special Pub, **233** (2004), 181-191.
- 2) Research Institute of Innovative Technology for the Earth (RITE): <http://www.rite.or.jp/index.html>
- 3) S. Benson et al.: *Carbon Dioxide Capture and Storage* (Cambridge University Press, UK, 2005), pp.208-210.
- 4) R.G. Færseth et al.: AAPG Bulletin, **91-9** (2007), 1231-1246.
- 5) S. Benson et al.: *Carbon Dioxide Capture and Storage* (Cambridge University Press, UK, 2005), pp.242-244.
- 6) G. Yousef et al.: Energy, **33** (2008), 1055-1067.
- 7) A. Kopp et al.: Int J Greenhouse Gas Control, **3** (2009), 263-276.
- 8) A. Kopp et al.: Int J Greenhouse Gas Control, **3** (2009), 277-287.
- 9) H. Yamamoto et al.: Int J Greenhouse Gas Control, **3** (2009), 586-599.
- 10) B. Bennion et al.: Proc. SPE Europe/EAGE Annual Conference (Vienna, 2006), Paper No SPE 99326.
- 11) B. Bennion et al.: Proc. SPE Europe/EAGE Annual Conference (London, 2007), Paper No SPE 106995.
- 12) H. Suenaga: Annual Report of CRIEPI (2008).

- 13) J. C. Perrin et al.: Energy Procedia, **1** (2009) , 3515-3522.
- 14) T. Suekane et al.: Proc. JSME Annual Meeting (2006) , Vol.3, pp.75-76.
- 15) T. Suekane et al.: Proc. JSME Annual Meeting (2007) , Vol.3, pp.109-110.
- 16) H. Okabe et al.: Proc. Advanced in Computed Tomography for Geomaterials GeoX2010 (2010) , pp.213-221.
- 17) C. H. Pentland et al.: Proc. SPE International Conference on CO2 Capture, Storage and Utilization (New Orleans, 2010) , Paper No SPE 138476.
- 18) A. Sato et al.: Journal of MMIJ, **125** (2009) , 437-444.
- 19) JAPT: Sekiyukouguyobinran (JAPT, Tokyo, 1983) , pp.504.
- 20) G. Zvyoloski et al.: FEHMN 1.0 Finite Element Heat and Mass Transfer Code, (LA-12062-MS, Rev.1, Los Alamos, 1992) .
- 21) R. J. Pawar: Proc. Joint meeting with AIST and LANL (USA, 2007) .
- 22) A. N. Brooks et al.: *Colorado State University Hydrology Paper* (Colorado State University, USA, 1964) .
- 23) JAPT: Sekiyukouguyobinran (JAPT, Tokyo, 1983) , pp.500-504.
- 24) H. Minagawa et al.: Jour. Jpn. Association for Petroleum Technology, **74-5** (2009) , 472-485.
- 25) JAPT: Sekiyukouguyobinran (JAPT, Tokyo, 1983) , pp.501.
- 26) JSME: *JSME STEAM TABLES* (Marzen, Tokyo, 1999) , pp.167
- 27) A. T. Corey: Prod. Mon, **19** (1954) , 38-41.