多孔質砂岩中に存在する低孔隙率の葉理面が 超臨界 CO₂ 流動に与える影響：弾性波速度による検討 *

北 村 圭 吾¹ 薛 自 求² 千 代 延 俊³
山 田 達 也⁴ 西 澤 修⁵

The Effect of Lamina on Super Critical CO₂ Behavior in Porous Sandstone: Investigations from Elastic Wave Velocity

by Keigo KITAMURA^{a*}, Ziqiu XUE^a, Shun CHIYONOBU^a,
Tatsuya YAMADA^b and Osamu NISHIZAWA^a

a. Research Institute of Innovative Technology for the Earth (RITE)

(*Corresponding author, E-mail: kitamura@i2cner.kyushu-u.ac.jp)

b. Department of Civil and Earth Resources Engineering, Kyoto University, Master course students

To better understand trapping mechanisms of CO₂ in reservoir, we try to elucidate the effect of thin and low-porosity lamina in porous Tako sandstone on CO₂ flow by experiments and numerical simulations. Tako sandstone is characterized by the well-developed and low porosity lamina, where the intergranular space is filled with precipitated iron-rich minerals. We measure P-wave velocities (V_p) in three channels which are crossing through high porosity zone (Ch.A), on a lamina (Ch.B), and beneath the lamina (Ch.C) during CO₂ injection stage (drainage) and water re-injection stage (imbibition). In drainage, all channels show large V_p -reduction over 10 %. In imbibition, they indicate V_p -increases but different recovery patterns with injecting CO₂-saturated water. After 250 ml water injection, V_p of Ch.A and Ch.B almost recover from V_p -reduction in drainage. On the other hand, V_p of Ch.C still has a reduction about 4%. We then try 2D core-scale flow-simulations by using TOUGH-2 to confirm the effect of lamina on fluid flow and pattern of CO₂ distribution. In drainage, CO₂ has large mobility and moves upward vigorously to the top-end of core at 20ml CO₂-injection. After reaching the top-end, CO₂ invades lamina zone and raises CO₂-saturation during drainage. In enhanced case of difference between porosity-permeability relation, the result of simulation indicates the strong heterogeneity of CO₂-distribution pattern, which shows clear low-CO₂ saturation of the lamina zone and obvious high-CO₂ saturation of the zone of direct beneath of lamina. In imbibition, CO₂ saturation decreases rapidly after 40ml water injection. However, the zone of beneath the lamina keeps high CO₂ saturation after 100ml water injection. These results suggest that the lamina in Tako sandstone behave as barriers of CO₂ flow. This assumption is supported by results of V_p -measurement, because the channel of beneath a lamina still shows a V_p -reduction about 4% after 250 ml water injection.

KEY WORDS: CO₂ Geological Storage, CO₂ Monitoring, P-wave Velocity, CO₂ Trapping, Laminae, TOUGH2

1. は じ め に

大規模発生源から分離回収された二酸化炭素（以下 CO₂）を地下深部の塩水性帯水層に貯留する技術は、温室効果ガス削減における当面の緩和策として有望であり、CO₂ 地中貯留は世界各国で実施への動きが活発化している¹⁾。

我が国では 2003 年より新潟県の南長岡ガス田で CO₂ 圧入実証試験（以下長岡プロジェクトと呼ぶ）が行われ、圧入された CO₂

の挙動モニタリングにおいて多くの先駆的な研究成果が得られている。棚瀬他²⁾は長岡プロジェクトにおいて CO₂ 観測井における音波検層結果から、CO₂ が観測井近傍に到達すると音波速度が大きく減少することを明らかにした。また Xue and Ohsumi³⁾では水に飽和した多孔質砂岩中に液相、気相および超臨界状態の CO₂ を注入し、孔隙中の水が CO₂ に置換されるによって、P 波速度が大きく低下することを実験的に示した。

一方、長岡プロジェクトでは繰り返し比抵抗検層結果から、圧入した CO₂ が貯留層内部で均質な分布を示さず、層状の局所的な分布をしていることが明らかになっている (Fig. 1)⁴⁾。このような不均質分布の原因として、貯留層内部に存在する数 10cm 以下の泥岩層やシルト層、火山灰層などが考えられる。これらの小規模な不均質構造は貯留層の主要な構成岩相である砂層に比べて、局所的な低孔隙率層を形成し、CO₂ の均質拡散を阻害し、貯留層内部で CO₂ の不均質分布に寄与している可能性がある。

そこで本研究では貯留層内部のこうした小規模不均質構造が

*2011 年 5 月 9 日受付 2012 年 3 月 26 日受理

1. 地球環境産業技術研究機構 (RITE) 研究員, 現 九州大学 カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所

2. 正会員 地球環境産業技術研究機構 (RITE) 副主席研究員

3. 地球環境産業技術研究機構 (RITE) 研究員

4. 京都大学大学院 工学研究科 社会基盤工学専攻, 現 国際石油開発帝石

5. 地球環境産業技術研究機構 (RITE) 主任研究員

[著者連絡先] FAX: 092-802-6871

E-mail: kitamura@i2cner.kyushu-u.ac.jp

キーワード: CO₂ 地中貯留, CO₂ 挙動モニタリング, P 波速度, CO₂ トラッピング, 葉理面, TOUGH2

Fig.1 Results of time-lapse resistivity monitoring in Nagaoka project (Mito and Xue, 2010) .

Fig.2 Micro-photographs of Tako sandstone. a) Lamina zone, b) High porosity zone. Qtz: quartz, Pl: plagioclase, Hem: hematite.

CO₂の流動にどのようにかかわっているかを明らかにするため、低孔隙率の葉理面を持つ多胡砂岩を用いたCO₂注入試験を行い、弾性波速度(P波速度)の変化から葉理面がCO₂の貯留特性に及ぼす影響を調べた。またTOUGH2によるコアスケールの流動シミュレーションを行い、CO₂飽和度分布を求め、この経時変化の結果と実験によるP波速度変化の結果を基に、CO₂流動と層位トラップに低孔隙率の葉理面が与える影響について考察した。

2. 試料とP波速度測定法

2・1 測定試料

本研究では、明瞭な層状構造をもつ多胡砂岩を測定試料として用いた。多胡砂岩は、淡褐色～褐色の細粒から中粒砂岩で葉理構造が発達し、しばしば暗褐色の沈殿物をともなう。多胡砂岩の構成鉱物は、主に石英、長石、粘土鉱物からなり、長石は変質したものが多い(Fig. 2)。葉理面に認められた沈殿物は赤鉄鉱を含む粘土鉱物であり、粒子間隙を埋めるように存在する(Fig. 2)。

測定試料は葉理面に垂直にコアリングし、長さ直径がそれぞれ100mm、50mmの円柱状である。また、水銀ポロシメータを用いて、葉理面とそれ以外の部分の孔隙率と孔隙径分布を測定した(Fig. 3; Table 1)。褐色の葉理面が発達する試料(Laminae zone)の孔隙率は11.32%である。一方、葉理の発達しない部分(High porosity zone)の孔隙率は21.63%でほぼ倍の値をとる。孔隙分布は、両試料ともにバイモーダル分布を示し、10 μmと0.01 μm

Fig.3 Pore size distributions in Tako sandstone measured by the mercury-injection method. a) Laminae zone, b) High porosity zone.

Table 1 Difference of porosity between laminae zone and high porosity zone.

Sample	Total Porosity [%]	Median [μm; vol.]
Laminae zone	11.32	2.73
High poro. zone	21.62	3.28

Fig.4 Locations of P-wave transducers cemented on the sample. Six transducers were arranged in three pairs of seismic wave detonators and receivers to monitor the movement of CO₂ along the longitudinal axis of the sample.

に頻値が認められる。全孔隙をあわせた重量平均径は、Laminae zoneで2.73μm、High porosity zoneで3.28μmである。

2・2 P波速度測定手法

110℃のオープンで24時間以上乾燥させた、多胡砂岩の葉理面上に1対(Ch.B)、孔隙率の高い領域に2対(Ch.A, Ch.C)のP波振動子を配置し、それぞれの振動素子を結ぶ弾性波伝播経路(チャンネル)でのP波速度を測定した(Fig. 4)。孔隙率の高い

Fig. 5 Schematic diagram of the experimental apparatus.

領域に設置したチャンネルのうち一つは葉理面の直下に設置した (Ch.C)。振動素子は電気的ノイズの低減を図るために、厚さ 0.2mm の銅箔の上にエポキシ系樹脂を用いて試料側面に貼り付けた。また、圧力媒体オイルの試料内部への侵入を防ぐために試料表面をシリコンゴムでコーティングした。

実験システムの概略図を Fig. 5 に示す。本研究ではパルス透過法を用いて P 波速度を測定した。パルスジェネレーターで発生したパルスは高速スイッチングシステムを介して、発信側の P 波振動子 S1 から S3 まで順に与えられ、これらの振動子と対向する受信側振動子 R1, R2 および R3 を結ぶ、3 チャンネルの P 波速度を測定した。観測波形の S/N 比を高めるために、それぞれ 100 回のスタッキングを行っている。

2・3 超臨界 CO₂ および飽和水の注入手順

地下 1000m に相当する貯留層の温度圧力条件を再現し、CO₂ を超臨界状態に保つため、封圧 12MPa、間隙水圧 10MPa および 40℃ の温度圧力条件下で測定を行った。

岩石試料を圧力容器内に配置し、間隙流体の注入経路となるステンレスチューブと接続し、真空ポンプを用いてサンプル及びステンレスチューブの真空脱気を行う。次に封圧制御用のシリンジポンプ A を用いて、試料に 2MPa の封圧を負荷した。下流側のシリンジポンプ C によって、試料の上端面から CO₂ 飽和水を約 50ml (1.25PV, 1PV: 約 40ml) 注入し、封圧と間隙水圧をそれぞれ 3.0MPa, 1.0 MPa まで段階的に昇圧した。その後、封圧と間隙水圧の差圧 (有効封圧) が 2.0MPa を保ちながら、さらに段階的に 12MPa, 10MPa まで昇圧した。この時の試料の状態を水飽和状態とする。

次に上流側に位置するシリンジポンプ B を用いて超臨界 CO₂ を注入した。超臨界 CO₂ の注入圧はシリンジポンプ B と C の圧力差を 0.2MPa 以下に保つように制御しながら、試料下端面から注入した。注入された CO₂ は孔隙中の水を置換しながら、試料下端から上方に移行していく。この CO₂ 注入過程を drainage と呼ぶ。本研究では約 230ml (5.75 PV) の CO₂ を注入して終了した。この状態を不動水飽和状態とする。その後、再びポンプ B を用いて、CO₂ に飽和した水を試料下端面から、drainage と同程度の圧力勾配と圧入レートになるように CO₂ 飽和水を注水した。この注水過程を imbibition とする。250ml (6.25PV) の飽和水を注水した段階で実験終了とした。

2・4 Drainage および Imbibition における流体の注入圧と流量

Fig. 6 Changes of flow rate, injected volume and Injection pressure. a) Super critical CO₂ in drainage, b) CO₂-saturated water in imbibition

測定試料に超臨界 CO₂ および CO₂ 飽和水を注入した時の注入レートおよび注入総量の変化を Fig. 6 に示す。この時、注入圧は 10.2MPa を超えないように設定した。

Drainage では注入レートは注入開始直後から 150 分まで増加し、それ以降は 0.1-0.25ml/min の間で小刻みな増減を繰り返しながら全体としては増加傾向を示した。約 1200 分で約 230ml (5.75PV) の超臨界 CO₂ が注入された (Fig. 6a)。

Imbibition では注水レートは継続的な増加傾向を示し、1000 分で約 0.1ml/min, 1800 分で 0.4ml/min を示した。注水量は注水レートに伴って増加し、800 分以降急激に増加する。このとき、約 1800 分で約 250ml (6.25 PV) に達した (Fig. 6b)。

3. P 波速度測定結果

3・1 Drainage

Drainage における 3 チャンネルの P 波速度の変化を Fig. 7a に示す。水飽和状態における Ch.A, Ch.B, Ch. C の P 波速度はそれぞれ 3.05km/s, 3.11km/s, 3.00 km/s であった。CO₂ の注入量が 10ml (0.25PV) に達すると、まず Ch.A に P 波速度の低下が見られ、CO₂ の注入が進むにつれて、CO₂ の注入端に近いチャンネルから順に 15ml (約 0.38 PV) で Ch.B, 20ml (0.5PV) で Ch.C に速度低下がそれぞれ確認された。P 波速度は CO₂ 注入量が 100ml (2.5 PV) まで顕著な低下を示した。注入量が 100ml (2.5 PV) の時、3 つのチャンネルの P 波速度はそれぞれ、2.75 km/s, 2.84km/s および 2.72km/s であった。その後も CO₂ 注入量が 230ml (5.75PV) に達するまで CO₂ の注入を行ったが P 波速度の変化は見られなくなったので、不動水飽和状態に達したとして CO₂ の注入を終了した。このときの P 波速度の変化率を Fig. 7b に示す。全てのチャ

Fig.7 a) Changes of P-wave velocity with injected CO₂ volume in drainage.
b) Vp-change ratio versus injected CO₂ volume in drainage.

Fig.8 a) Changes of P-wave velocity versus injected water volume in imbibition.
b) Vp-change ratio versus injected water volume in imbibition.

ンネルで CO₂ の注入に伴い P 波速度がそれぞれ 11%, 10.3%, 10.7% と大幅に減少した。またこの時、各チャンネルは類似した変化率曲線を示した。

3・2 Imbibition

次に Imbibition における P 波速度変化を Fig. 8a に示す。Ch.A では注水量が 40ml (1PV) を超えると緩やかな速度の回復が始まり、70ml (1.75PV) を超えると P 波速度は急激に増加する。注水量が 140ml (に達すると Ch.A の P 波速度は drainage 開始前の P 波速度 (3.05km/s) まで回復した。Ch.B では 100ml (0.25PV) を越えると P 波速度の回復が始まり、imbibition 終了 (約 6.25PV) まで緩やかな P 波速度の増加をしめした。Imbibition 終了時点での Ch.B の P 波速度は 3.08km/s であった。この時の P 波速度の変化率は水飽和状態での P 波速度に対して -0.92% であった。これらの結果から、Ch.A および Ch.B の 2 チャンネルは imbibition により P 波速度はほぼ完全に回復したといえる (Fig. 8b)。Ch.C も Ch.B に類似した緩やかな P 波速度の増加を示した。注水量が 100ml (2.5PV) を超えると P 波速度の増加が始まり、imbibition 終了時点での P 波速度は 2.89km/s であった。この時、Ch.C の P 波速度変化率は -3.75% で他の 2 つのチャンネルと比較して有意に小さい。

Drainage ではそれぞれ異なった構造上に設置したチャンネルがともに類似した P 波速度の変化曲線と P 波速度変化率を示したのに対し、Imbibition では各チャンネルで異なった P 波速度の変化を示した。孔隙率の高い領域に設置した 2 つのチャンネルのうち、Ch.A は急激な P 波速度の回復を示したのに対し、薬理面構造の直下に設置した Ch.C は、薬理面上に設置した Ch.B に類似した緩やかな P 波速度の変化曲線を示した。また、Ch.A と Ch.B は 250ml (6.25 PV) の注水に伴い、P 波速度はほぼ回復したのに対し、Ch.C は約 4% ほど P 波速度が低下したままであった。

これらの測定結果を基に次章では超臨界 CO₂ および CO₂ 飽和水の流動と岩石試料の孔隙構造の関係について議論する。

4. 考 察

4・1 P 波速度測定結果から推測される流体挙動

a) Drainage

Drainage では高孔隙率領域に設置した二つのチャンネル (Ch. A および Ch.C) と薬理面上のチャンネル (Ch.B) の P 波速度の変化に大きな違いが確認できなかった。各チャンネルの P 波速度は CO₂ 注入量の増加に伴い急激に減少し、注入量が 230ml (5.75 PV) のとき 10% を超える低下量を示した (Fig. 7)。これらの結果は Xue and Ohsumi³⁾ による多胡砂岩の P 波速度測定実験や均質な Berea 砂岩を用いた Kim et al.⁵⁾ の結果と調和的で、CO₂ の移動を反映していると考えられる。また薬理面上に設置した Ch.B の P 波速度変化量も -10% に達しており、薬理面のような低孔隙率領域においても孔隙中の水が CO₂ に置換されたことを示している。

b) Imbibition

一方、Imbibition では各チャンネルがそれぞれ異なった P 波速度の変化パターンを示した (Fig. 8)。高孔隙率領域に設置した Ch.A は CO₂ 飽和水の注水量の増加に伴い急激に P 波速度が回復し 100ml (2.5 PV) で水飽和状態の P 波速度までほぼ回復した。

Ch.B の P 波速度は注水量が 100ml を超えると緩やかな増加を開始し、注水量 250ml (6.25 PV) でほぼ CO₂ 注入前の値まで回復した。このような Ch.A および Ch.B の P 波速度の変化は imbibition により孔隙内の CO₂ が水に再置換されたためだと推測できる。

薬理面直下に設置した Ch.C の P 波速度も Ch.B と同様に注水量が 100ml に達すると緩やかな回復を開始した。しかし Ch.C の P 波速度は、注水量が 250ml (6.25 PV) に達しても -3.75% の未回復量を示した。Ch.A および Ch.B の P 波の速度低下量がほぼ 0% まで回復したことに対し、Ch.C では 4% 近い P 波速度低下量が残っていることから、このチャンネル上に CO₂ が留まっていることが推測できる。

このような各チャンネルの速度回復特性から CO₂ は高孔隙率領域では大きな流動性を持つものの、薬理面によって流動が妨げられ、薬理面直下に局在化している可能性が示唆された。

4・2 TOUGH2 による 2 次元流動シミュレーション

P 波速度測定実験の結果から明らかになった、各チャンネルの P 波速度回復メカニズムの違いを多孔質砂岩中の CO₂ 挙動の観点から定量的に検討するために、地下流体流動シミュレータ「TOUGH2」を用いて多胡砂岩中の二次元の流動シミュレーションを行った。

TOUGH2 は、非等温・多成分・多相系の流体シミュレータであり、地熱貯留層、放射性廃棄物の地層処分、地下水・土壌浄化、不飽和帯中の地下水流れなどへの適用を目的に開発されたものである。二酸化炭素地中貯留に対しても世界各国の CCS 実証試験において貯留層内部の CO₂ 挙動予測シミュレーションとして広く使用されている^{6,7)}。

4・2・1 TOUGH-2 による 2 次元流動シミュレーション手法

本研究では TOUGH-2 を用い、CO₂ の 2 次元流動シミュレーションを行い、多胡砂岩中の薬理面構造のような小規模不均質構造が CO₂ 流動に与える影響を評価した。

シミュレーションに使用する岩石モデルは以下の手順で作成した。まず実際に P 波速度測定に使用した岩石の薄片試料を作成し、その観察結果を基に薬理面と高孔隙率領域を 1250 セル (縦 50 セル x 25 セル) のグリッド上に配置し構造モデルとした。次に水銀ポロシメータを用いて測定した薬理面 (代表値 11%) 及び高孔隙率領域 (22%) の孔隙率を、それぞれの標準偏差 2% および 1% の

Fig.9 Porosity distribution models of Tako sandstone for TOUGH2 simulation. a) Texture of sample, b) Pore distribution model.

Fig.10 Difference between two Porosity-Permeability relations. Carman-Kozeny: Carman-Kozeny equation, Power-Law: Power-law Porosity-permeability correlation.

範囲で乱数的に発生させて構造モデルの葉理面と高孔隙率領域に与え、孔隙率分布モデルを作成した (Fig. 9)。

次に、孔隙率分布モデルのそれぞれのセルに絶対浸透率を与える。本研究ではまず Carman-Kozeny の式⁸⁾ (式 1) を用いて、孔隙率分布モデルの各セルの絶対浸透率を求めた。

$$K_{ab} = \frac{c_0}{(a\phi^b)(1-\phi)^2} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 K_{ab} は絶対浸透率、 ϕ は孔隙率を示す。また定数 a , b は Krause et al.⁹⁾ に倣い、それぞれ $a=0.0316$, $b=0.7596$ とした。また c_0 は小暮他¹⁰⁾ の多胡砂岩を用いた相対浸透率測定実験に基づき、孔隙率 20% の時、浸透率が 10mD になるように設定し、各セルの絶対浸透率を算出し CK モデルとした。

また、CK モデルと比較して、孔隙率の違いが絶対浸透率により大きく反映されるモデルも設定した。ここでは多胡砂岩に対する超臨界 CO₂ の浸透試験を行った Shi et al.¹¹⁾ に倣い、べき乗式 (Power Law: 式 2) を用いて絶対浸透率を計算し PL モデルとした。

$$K_{ab} = A \exp(70\phi) \dots\dots\dots (2)$$

PL モデルにおいても CK モデルと同様に孔隙率 20% の時、浸透率が 10mD になるように定数 A を設定した。それぞれのモデルにおける孔隙率—絶対浸透率の関係を Fig. 10 に示す。

多孔質媒体中の多相流体の挙動は相対浸透率と毛細管圧に強く支配されることがよく知られている。本研究では、Pruess and Garcia¹²⁾ および Doughty and Preuss.¹³⁾ に従い、相対浸透率は以下に示す Corey の式¹⁴⁾ により求めた。

$$K_{ir} = \hat{S}^4 \dots\dots\dots (3)$$

$$K_{rCO_2} = (1-\hat{S})^2 (1-\hat{S}^2) \dots\dots\dots (4)$$

ただし $\hat{S}$ は次の式で与えられる。

Table 2 Condition settings of flow simulations.

	Model	S_{ir}	S_{CO_2r}
CK15-15	A	15%	15%
CK50-5	A	50%	5%
PL15-15	B	15%	15%
PL50-5	B	50%	5%

S_{ir} : Irreducible water saturation

S_{CO_2r} : Residual CO₂ saturation

CK: Carman-Kozeny

PL: Power-Law

Fig.11 Petrophysical parameters for TOUGH2 simulation a) Relative permeability curve, b) Capillary pressure curve.

$$\hat{S} = \frac{(S_w - S_{ir})}{(1 - S_{ir} - S_{CO_2r})} \dots\dots\dots (5)$$

S_w は水の飽和度、 S_{ir} は不動水飽和度、 S_{CO_2r} は残留 CO₂ 飽和度をそれぞれ表す。

同様に毛細管圧曲線 (P_{cap}) も前述の Pruess and Garcia¹²⁾ および Doughty and Preuss.¹³⁾ に従い、von Genuchten の式¹⁵⁾ を用いて求めた。

$$P_{cap} = -P_0 \left([S^*]^{-1/\lambda} - 1 \right)^{1-\lambda} \dots\dots\dots (6)$$

$$-P_{max} \leq P_{cap} \leq 0 \dots\dots\dots (7)$$

P_0 は水圧、 P_{max} は最大圧力制限値を表す。

また S^* は次の式で与えられる。

$$S^* = \frac{(S_w - S_{ir})}{(1 - S_{ir})} \dots\dots\dots (8)$$

不動水飽和度 (S_{ir}) と残留 CO₂ 飽和度 (S_{CO_2r}) は、相対浸透率曲線および毛細管圧曲線を決定する重要な変数である。本研究では前述のおよび小暮他¹⁰⁾ および Shi et al.¹¹⁾ に基づいてこれらの変数をそれぞれ、 S_{ir} , S_{CO_2r} が (50%, 5%) および (15%, 15%) とする 2 ケースを設定した (Table 2)。またそれぞれの変数の場合の相対浸透率および毛細管圧を Fig. 11 にしめす。Shi et al.¹¹⁾ の測定

結果では drainage と imbibition での履歴効果は報告されていないため、ここでは考慮しない。

本研究では Table 2 に示すように、CK モデルと PL モデルに対して S_{ir} と Sc_{O_2r} を変化させた 4 ケースのシミュレーションを行った。

CO_2 および CO_2 飽和水の注入レートは、注入量の時間変化データに基づいて設定し、drainage, imbibition とともに注入量が 250ml (6.25PV) に達するまで流動シミュレーションを実施した。

4・2・2 CO_2 飽和度変化予測 TOUGH2 を用いた CO_2 流動シミュレーションの結果を Fig. 12 に示す。Drainage では CO_2 の注入量が 20ml (0.5PV) および 40ml (1PV), 120ml (3PV), 200ml (5PV) の時の、Imbibition では CO_2 飽和水の注水量が 20ml (0.5PV) および 40ml (1PV), 120ml (3PV), 180ml (4.5PV) の時のコア試料の高さ方向への CO_2 飽和度分布を示している。

CO_2 の注入量が 20ml (0.5PV) の段階で、全てのケースでコア最上部まで CO_2 が到達していることが確認できる (Fig. 12a)。CK モデルを使用した 2 ケースでは、 CO_2 の注入側であるコアの下端から上端に向かって単調に CO_2 飽和度が減少する CO_2 分布パターンを示した。この時、CK15-15 は CK50-5 よりも大きな CO_2 飽和度を示す。一方、PL モデルを使用した 2 ケースでは葉理面などの岩石構造に強く影響を受けた CO_2 飽和度分布を示し、葉理面が存在する領域の CO_2 飽和度は周囲の高孔隙領域より明らかに低い値を、また葉理面直下の領域では逆に高い CO_2 飽和度を示した。PL モデルを用いた 2 ケースでは、高孔隙領域において、PL15-15 は PL50-5 より高い CO_2 飽和度を示し、葉理面に相当する領域の CO_2 飽和度は PL15-15 と PL50-5 で類似した値を示している。

CO_2 の注入量が 40ml (1PV) に達すると CK15-15 および CK50-5 は注入量が 20ml (0.5PV) の時と比較して、コア全体の CO_2 飽和度が緩やかに増加した。一方、PL モデルの 2 ケースではコア上部の CO_2 飽和度が増加している。PL15-15 では葉理面直下の高孔隙領域の CO_2 飽和度が 20 ml (0.5PV) の段階と比べて大きくなっている。またコア上部の葉理面の CO_2 飽和度も上昇していることが確認できる (Fig. 12b)。

CO_2 の注入量が 120ml (3PV) の段階では、PL モデルの 2 ケースにおいてコア試料下部の葉理面も CO_2 飽和度が上昇している (Fig. 12c)。この葉理面の CO_2 飽和度の上昇は CO_2 注入量が 200ml (5PV) に達していても確認できる (Fig. 12d)。

次に Imbibition における飽和度変化を示す。注水量が 20 ml (0.5PV) の時、既にコア上端まで水が到達し、コア試料全体の CO_2 飽和度が大きく低下している。また PL モデルの 2 ケースの CO_2 飽和度分布は強い葉理面の影響を受けていることが Imbibition においても確認できた。一方、CK モデルの 2 ケースの計算結果ではコア下端部の CO_2 飽和度が低く、上端に向かって緩やかに CO_2 飽和度が増加していく CO_2 分布パターンが共通して示された。またこの時、CK-50-5 および PL50-5 ではコア下端部の飽和度がほぼ 0 になっている (Fig. 12e)。

注水量が増加すると CK モデルではコア試料内部の CO_2 分布はより一様になり、また下端部より CO_2 飽和度が極端に低下した領域が拡大していく様子を確認することができる。180ml (4.5PV) の注水量では CK15-15 では高さ 30mm, CK50-5 では 50mm まで CO_2 が完全に水に再置換されている様子が確認できる (Fig. 12h)。一方、PL モデルでは不均質な CO_2 分布を保ったまま、コア下端部より CO_2 飽和度が 0 を示す領域が拡大し、葉理面直下の領域では CO_2 が完全に水に置換されずにその領域に留まっている様子が確認できた (Fig. 12g, h)。

これらのシミュレーション結果から、多孔質砂岩中の CO_2 お

よび水の挙動に対して、孔隙率-絶対浸透率曲線と相対浸透率曲線が強い影響を与えていることが分かった。孔隙率の違いが絶対浸透率の違いに大きく反映される孔隙率-絶対浸透率曲線を用いた PL モデルの場合、我々の仮説を支持するような、葉理面の直下に CO_2 飽和度の高い領域が形成される不均質な CO_2 分布が得られた。またこのような不均質な CO_2 分布は Imbibition においても保持される。

同様に、 Sc_{O_2r} および S_{ir} はコア試料全体の CO_2 飽和度に強い影響を与えていることが示唆された。Drainage および Imbibition におけるコア全体の CO_2 飽和度とその変化は、それぞれ CK15-15 および PL15-15, CK50-5 および PL50-5 が類似した値を示し、 Sc_{O_2r} および S_{ir} が (15%, 15%) とした 2 ケースは明らかに大きな飽和度を示した (Fig. 13)。

これらの結果から多胡砂岩のような多孔質砂岩において、孔隙率-絶対浸透率曲線が多胡砂岩中の CO_2 の分布を決定し、 S_{ir} と Sc_{O_2r} もしくは相対浸透率曲線が CO_2 飽和度に大きな影響を与えていると推測できる。

4・3 多胡砂岩中の CO_2 挙動

ここでは P 波速度測定実験の結果と CO_2 の不均質分布を最も良く表現していると考えられる、PL50-5 のシミュレーション結果に基づき (Fig. 14)、コア試料内部での CO_2 の挙動について議論する。

シミュレーション結果からコア下端部より注入された CO_2 は急速にコア上部へ流動し、注入量が 20ml (0.5PV) に達するとコア上端部に到達することが分かった。このような CO_2 挙動は I_p 測定結果とも矛盾しない。

P 波速度測定では CO_2 注入量がそれぞれ、8ml (0.2PV) の時に Ch.A, 12ml (0.3PV) では Ch.B, 16ml (0.4PV) で Ch.C が、それぞれ P 波速度の急激な低下を示している。 CO_2 注入量が 20 ml (0.5PV) を超えると P 波速度の変化が小さくなり、80 ml (2PV) を超えると P 波速度の変化は確認できなくなった。

一方シミュレーション結果からは CO_2 の注入量が 80ml (2PV) を超えても、コア試料全体の CO_2 飽和度が増加することを示している。この結果は、 CO_2 飽和度の高い領域においては、 CO_2 飽和度の変化が P 波速度に反映されにくいことを示している。前述の Xue and Ohsumi³⁾ や Kim et al.⁵⁾ でも同様の報告を行っており、P 波速度のみによる CO_2 挙動モニタリングの限界を示唆している結果であるといえる。しかし、 CO_2 飽和度が P 波速度に反映される飽和度領域においては、P 波速度測定結果とシミュレーション結果は、比較的よい一致を示している。

これらの結果からコア試料中に注入された CO_2 の一部は孔隙中の水を置換し流路を形成しながら、コア試料中を急速に上昇し、比較的早い段階で、コア上端部に到達していることが推測できる。また、流路を形成できなかった CO_2 は葉理面によって流動を阻害され、葉理面直下の高孔隙領域にトラップされ、高 CO_2 飽和度領域を形成する。さらに注入量が増加すると葉理面内部にも侵入しコア全体の CO_2 飽和度の上昇に寄与していると考えられることができる。

このような CO_2 挙動の結果として葉理面では低い CO_2 飽和度を示し、その直下の高孔隙領域では高 CO_2 飽和度を示す領域が形成され、不均質な CO_2 分布パターンを示すと考えられる。

一方、Imbibition における CO_2 挙動は Drainage と比較して、より複雑である。シミュレーション結果からは CO_2 飽和水が葉理面内部や高孔隙領域中の CO_2 を再置換しながら上昇し、10ml (0.25PV) の注水量でコア上端部に達していることが確認できる。また注水量が 20ml (0.5PV) に達するまでの間に、コア全体の

Drainage

Imbibition

Fig.12 Changes of CO₂ distribution. In during, a) 20ml (0.5PV), b) 40ml (1PV), c) 120ml (3PV) and d) 200ml (5PV). In imbibition, e) 20ml (0.5PV), f) 40ml (1PV), g) 120 ml (3PV) and h) 180ml (4.5PV).

Fig.13 Simulated results of changes of CO₂-saturation during a) Drainage and b) Imbibition.

Fig.14 Simulated CO₂-distribution profile of PL50-5 during a) Drainage and b) Imbibition.

CO₂ 飽和度は急激に低下し (Fig. 13), コア試料中の流動性の高い CO₂ は imbibition の初期段階でコア外部に排出されていることが推測できる。しかし、この段階において葉理面直下の領域は周囲より高い CO₂ 飽和度を示している。従ってこの領域の CO₂ は葉理面の影響で流動性を失いこの領域にトラップされていることと推測することが可能である。

一方、P 波速度測定結果からは注水量が 20ml (0.5 PV) の段階では、全てのチャンネルにおいて P 波速度の変化が見られなかった。P 波速度の変化は注水量が 40ml (1PV) に達すると Ch.A で、80ml (2PV) では Ch.B および Ch.C でそれぞれ開始する。また Ch.A では注水量が 120ml (3PV)、Ch.B では 250ml (6.25PV) に達するとほぼ水飽和状態まで P 波速度が回復した。

しかし、PL50-5 の計算結果からは注水量が 20ml (0.5PV) の段階で、全てのチャンネルで CO₂ 飽和度が P 波速度で観測することが可能となる水準まで低下しており、P 波速度測定結果に基づく CO₂ 飽和度の変化予測と矛盾する。一方、CO₂ の分布パターンは P 波速度測定結果に基づく CO₂ 分布予測とよい一致を示した。注水量が 80ml (2PV) に達すると、Ch.A に相当する領域の CO₂ 飽和度が大きく低下し、160ml (4PV) では 0 を示した。Ch.B に相当する領域 (葉理面上) でも注水量が 160ml に達すると CO₂ 飽和度の著しい低下が始まり、180ml ではほぼ 0 になった。一方、葉理面直下の領域では 180ml の注水量の段階でも数%の CO₂ 飽和度を示しており、不均

Fig.15 Relationships between expected CO₂ distribution in reservoir from time laps resistivity monitoring and clay contents of Nagaoka project site. (After Mito and Xue, 2010 and Nakatsuka et al., 2010).

質な CO₂ 分布パターンを形成した。

これらの結果は PL50-5 では多胡砂岩中の CO₂ 挙動を完全には再現できていないことを意味するものの、Imbibition においても葉理面によって不均質な CO₂ 分布が形成されることを示した。

従って Imbibition におけるシミュレーションも適切な S_{CO_2r} や S_{ir} を用いることや、相対浸透率曲線や毛細管圧曲線の履歴効果などを考慮することによって、再現性を高めることが可能となると考えられる。

本研究の結果から、多胡砂岩中の葉理面は Drainage において CO₂ の流動を阻害し、葉理面の直下に CO₂ 飽和度領域を形成することが明らかになった。また、CO₂ 注入量が増加すると葉理面内部にも CO₂ が浸透し、コア試料全体の CO₂ 飽和度がさらに増加することが分かった。この時、葉理面直上の領域の CO₂ 飽和度も緩やかな増加傾向を示すことから、葉理面からの CO₂ の浸みだしが起こっていることが推測される。このようなメカニズムによって葉理面近傍の CO₂ 飽和度が周囲より高くなり、層位トラップのトラップ能力を向上させていると結論づけられる。

一方、Imbibition においても Drainage と同様に葉理面は CO₂ の流動に大きな影響を与えていることが分かった。CO₂ 飽和水の注水開始に伴い、葉理面内部や高孔隙領域の CO₂ 飽和度が著しく低下しても葉理面直下の CO₂ 飽和度は周囲と比較して高い値を示している。しかし、葉理面が残留トラップ量に与える影響を評価するためにはさらなる検討が必要である。

4・4 長岡実証試験サイトでのモニタリング結果との比較

本研究では多孔質砂岩中の低孔隙率の葉理面が CO₂ 流動に対しバリアとして機能していることを実験的およびモデルによる数値計算で確認した。長岡サイトで実施された比抵抗検層結果 (Fig. 1) に、長岡サイトにおける CO₂ 到達前の音波検層による P 波速度とガンマ線検層結果から求めた粘土の含有率^{2, 16)} および繰り返し比抵抗検層結果を示す (Fig. 15)。比抵抗測定の結果から 1113 ~ 1117m に比抵抗値の大きなコントラストが確認できる。粘土含有率や P 波速度の変動は貯留層の下層の大きな変化に比べ小さいが比抵抗値のコントラストが現れる深さは変動と対応している。比抵抗値の大きい 1113m と 1117m の間には超臨界状態の CO₂ が存在していることを示している。また 1115m では比抵抗の変化量が小さいことから CO₂ 飽和度が低くなっている可能性がある。

これらの結果から、それぞれの深度で粘土含有量が周囲の層より高い不均質領域が存在し、上下方向への CO₂ 流動に大きな影響を与え、CO₂ の不均質分布の原因となっていると推測できる。

5. まとめと今後の課題

本研究では多胡砂岩中の葉理面が岩石中の超臨界 CO₂ の挙動に与える影響について、P 波速度の変化と 2 次元流動シミュレーションから検討した。

その結果、葉理面のような小規模な孔隙率の不均質構造が CO₂ や CO₂ 飽和水の流動に強い影響を与え、不均質な CO₂ 分布パターンを形成する主要因となる可能性があることが明らかになった。

このような検討結果はシール層以外にも CO₂ のバリアとなる構造が貯留層内部に存在していることを意味し、貯留層の CO₂ 飽和度分布から計算される貯留ポテンシャル量の評価結果に影響すると考えられる。

本研究で実施した CO₂ 流動シミュレーションでは孔隙率 - 絶対浸透率曲線の設定に CO₂ 分布に大きな違いが生じることが分かった。孔隙率 - 絶対浸透率曲線は岩石試料ごとに大きく異なることが分かっている。Kitamura et al.¹⁷⁾ では堆積岩を構成する粒子の淘汰の程度に絶対浸透率が影響を受けることが示されており、詳細な岩石学的研究と絶対浸透率測定をあわせて行い、岩石試料ごとに孔隙率 - 絶対浸透率曲線を検討する必要がある。

同様に S_{CO_2r} や S_{ir} を変化したシミュレーション結果からは、相対浸透率が CO₂ 飽和度の大きさに影響を与えていることが確認できた。岩石の S_{CO_2r} や S_{ir} を厳密に測定し、相対浸透率を評価することは今後の重要な研究課題である。また前述の小暮他¹⁰⁾ では既存のモデルでは超臨界 CO₂ - 水系の相対浸透率変化を再現できないという報告を行っている。今後は S_{CO_2r} や S_{ir} の測定だけではなく、相対浸透率や毛細管圧を求める計算式の検討を行う必要がある。

そのためには S 波速度測定や物質収支評価試験などの手法で岩石試料の CO₂ 飽和度変化を見積もる必要がある。

謝辞 本稿を完成する過程では (財) 地球環境産業技術研究機構の研究員諸氏にはデータの提供や建設的な議論をしていただいた。また本稿の改良に当たって 2 名の匿名査読者には貴重なご指摘・ご意見を頂いた。ここに記して感謝します。

なお、本研究は経済産業省の委託事業「二酸化炭素回収・貯蔵安全性評価技術研究開発」の成果の一部である。

References

- 1) Z. Xue and T. Matsuoka: Journal of Geography, **117** (2008), 734-752.
- 2) D. Tanase, Z. Xue and K. Kano: Journal of MMIJ, **124** (2008), 50-60.
- 3) Z. Xue and T. Ohsumi: Exploration Geophys., **35** (2004), 25-32.
- 4) S. Mito and Z. Xue: Proc. 10th International conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-10), (Amsterdam, 2010).
- 5) J. Kim, Z. Xue and T. Matsuoka: Geophys. Exploration Geophys., **42** (2011), 58-68.
- 6) H. Yamamoto, K. Zhang, K. Karasaki, A. Marui, H. Uehara and N. Nishikawa: Inter. J. Greenhouse Gas Control, **3** (2009), 586-599, doi:10.1016/j.ijggc.2009.04.007.
- 7) H. Yamamoto and C. Doughty: Inter. J. Greenhouse Gas Control, **5** (2011), 975-985, doi:10.1016/j.ijggc.2011.02.007.
- 8) P.C. Carman: Flow of gases through porous media, (Academic Press, New York, 1956).
- 9) M. Krause, J.-C. Perrin, C.-W. Kuo and S. Benson: Energy Procedia, **1** (2009), 2969-2974.
- 10) T. Kogure, K. Kitamura, T. Yamada, O. Nishizawa and Z. Xue: Journal of Geology, **120** (2011), 944-959.
- 11) J.-Q. Shi, Z. Xue and S. Durucan: Inter. J. Greenhouse Gas Control, **5** (2011), 75-87, doi:10.1016/j.ijggc.2010.07.003.
- 12) K. Pruess and J. Garcia: Environmental Geology, **42** (2002), 282-295.
- 13) C. Doughty and K. Pruess: Vadose Zone Journal, **3** (2004), 837-847.
- 14) A.T. Corey: Producers Monthly, **19** (1954), 38-41.
- 15) M.Th. vonGunten: Soil Sci. Soc., **44** (1980), 892-898.
- 16) Y. Nakatsuka, Z. Xue, H. Garcia and T. Matsuoka: Inter. J. Greenhouse Gas Control, **4** (2010), 209-216, doi:10.1016/j.ijggc.2010.01.001.
- 17) K. Kitamura, M. Takahashi, K. Mizoguchi, K. Masuda, H. Ito, and S.-R. Song: Geophysical Journal International, **182** (2010), 1148-1160, doi:10.1111/j.1365-246X.2010.04694.x.