

## 再生可能エネルギーとしてのメタンガス：CO<sub>2</sub>リサイクルCCSによる持続可能な炭化水素エネルギー資源開発

### Methane gas as a renewable energy: Sustainable hydrocarbon energy resources development by carbon recycling CCS

小出 仁<sup>1\*</sup>

KOIDE, Hitoshi<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 産業技術総合研究所

<sup>1</sup> National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

メタンガスが再生可能エネルギーであると言うと、不審に思われるであろう。通常、メタンガスは化石燃料の一種であり、有限な資源と考えられている。すなわち地下に存在するメタンガスの多くは石油・石炭や有機物の熱分解によって生成されたと考えられている。地下に埋もれた有機物は生物の残渣であるから、石油・石炭と同じくメタンガスの多くは化石起源であるということが出来る。しかし、地下にメタン生成菌と呼ばれるアーケア（古細菌あるいは始原菌とも呼ばれ、通常の細菌とはまったく異なる原核微生物のグループ）の一種が多量に生息していることが最近明らかになってきている。メタン生成菌の多くの種類は、酢酸などの有機酸等からメタンを生成するため、その生成するメタンも化石起源である。しかし、CO<sub>2</sub>と水素からメタンを生成するCO<sub>2</sub>還元メタン生成菌と呼ばれる種類は、化石起源ではない深部起源のCO<sub>2</sub>からメタンを生成することができる。マントルからメタン等の炭化水素が直接湧出するというトーマス・ゴールドの地下深層ガス説（石油無機起源説の一種）は確認されていないが、マントル起源のCO<sub>2</sub>からCO<sub>2</sub>還元メタン生成菌により生成されたメタンが、日本のような火山地帯の地下には少なくともごく一部は存在する。有機物に乏しい地下深部の火成岩中や深海底下の玄武岩海洋地殻中では、有機物起源ではないCO<sub>2</sub>と水素からCO<sub>2</sub>還元メタン生成菌により生成されたメタンが多くを占めるであろう。マントルから湧出してきたCO<sub>2</sub>や熱水と岩石の反応によって生成された水素から作られるメタンは、化石エネルギー資源ではなく、再生可能エネルギー資源である。深海底下の玄武岩質海洋地殻中のメタンハイドレートは再生可能エネルギー資源である可能性が高い。

CO<sub>2</sub>回収・貯留（CCS）により、CO<sub>2</sub>を地下に貯留するとCO<sub>2</sub>還元メタン生成菌によりメタンに変換される可能性がある。このCO<sub>2</sub>リサイクルCCSが実用化されれば、CO<sub>2</sub>の大気への放出を抑制しつつメタンガスを再生可能エネルギーとして利用できるようになり、持続可能な炭化水素エネルギー資源開発が実現できる。

キーワード: CCS, CO<sub>2</sub>リサイクル, 再生可能エネルギー, メタン生成菌, 化石エネルギー, メタンハイドレート

Keywords: CCS, carbon recycling, renewable energy, methanogen, fossil energy, methane hydrate

## 炭素の循環系の分類と地球温暖化ガスの地球的な循環処理

### Classification and global circulation treatment of carbon circulation system for greenhouse gas

三浦 保範<sup>1\*</sup>

MIURA, Yasunori<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> 非常勤 (大学)

<sup>1</sup> Visiting (Univs.)

これまでの国内外研究者らによる地球温暖化問題における地球環境の炭素問題の考え方は産業革命以後の地球の化石燃料による炭酸ガス放出に対して、停止目的とした使用削減や炭素固定目標に経済教育そして科学技術を展開していることである。3.11 原発事故の教訓は、人間社会維持のためにすべての英知を人工エネルギーの原発開発に費やしても、使用後は停止や廃棄的な考えで処理をしていて私たちの長い歴史舞台の地球惑星の視野の対策が欠けていたことである。

筆者はそのグローバルな物質循環的な炭素循環を提案し研究している。宇宙起源の太陽光・太陽系天体も含めて自然エネルギーの有効利用だけでなく、活動的な地球の化石燃料起源炭素の循環的回収(再利用を含む)など私たちが完全な使用制御を可能にし、全体での動的で安定的な利用(停止や廃棄的な考えを含まない)ブレークスルーの変革がこれから必要である。

地球での炭素循環には主に次の3種類が考えられる。

- 1) 長周期グローバル地球炭素循環: 長い地質時代の数億年前の石炭などの炭素である(石油も含む)。
- 2) 短期局所生物炭素循環: 短い年単位生物を構成する炭素である。
- 3) 工業化起源炭酸ガス: 地球温暖化の主原因となる工業的な炭酸ガス起源の炭素である。

産業革命約150年前には、主に1)と2)の炭素循環系で、長短周期の炭素系が地球を支配していた。

しかし、産業革命約150前以降は、1)と2)の炭素循環系以外に、3)の短い時間で状態変化をして、複雑に1)2)3)が混在する炭素系となり、地球の温暖化を進行している。

1)の自然系炭素は、石炭起源炭素の形成が、地球での炭酸ガスや酸素をかなり変化させた地質年代で形成されているので、その石炭炭素を人間社会の活動で放出する場合(3炭素系に相当)は、ただ燃焼放出してごみ焼却の様な停止をするのではなく、完全な炭素回収制御による動的な安定状態の実現が不可欠である。

そのための今後は、人工的3)起源炭素の迅速放出してからの状態変化を停止的処理だけでなく、人間社会でかなり制御できる科学技術的工夫などが必要である。

キーワード: 炭素循環系, 動的安定系, 短周期炭素循環, 長周期炭素循環, 産業革命, 地球内外炭素循環

Keywords: carbon circulation system, dynamic stable system, short carbon cycle, long carbon cycle, industrial revolution, T-ET carbon cycles

## 実験的手法に基づく鉱物トラッピング進行速度の定量的評価 Evaluation of CO<sub>2</sub> Mineral Trapping Rates in Aquifers based on experimental studies

高谷 雄太郎<sup>1\*</sup>, 中村 謙太郎<sup>2</sup>, 加藤 泰浩<sup>1</sup>

TAKAYA, Yutaro<sup>1\*</sup>, NAKAMURA, Kentaro<sup>2</sup>, KATO, Yasuhiro<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東大・工・システム創成, <sup>2</sup> 海洋研究開発機構

<sup>1</sup>Sys. Innovation, Univ. of Tokyo, <sup>2</sup>PEL, JAMSTEC

In this study, experiments on CO<sub>2</sub>-water-rock interaction have been conducted to elucidate the rock dissolution rate and to investigate long-term dissolution and precipitation phenomena in CO<sub>2</sub> reservoirs. The dissolution experiments are conducted by using semi-open experimental system constructed for this study. As the rock samples, in addition to the basalt which is considered as a suitable candidate rock formation for geochemical trapping of CO<sub>2</sub>, tuffaceous sandstone (Hayama group: Kanagawa Prefecture) and three green tuff rocks (Tsugawa formation: Niigata Prefecture, Ushikiri formation: Shimane Prefecture, Daijima formation: Akita prefecture) from the Quaternary igneous rocks widely distributed in Japan were used.

From the eight-month-period of experiments, the facts found were that the composition of formation water will converge at the point where the rock dissolution and precipitation of secondary mineral are balanced and CO<sub>2</sub>-water-rock interaction proceeds under a certain formation water composition. For this reason, the determination of rock dissolution rate (element release rate) under a certain formation water composition inherent in each rock sample is indispensable in order to predict the long-term progress of the reaction within CO<sub>2</sub> reservoirs.

Si release rate under a certain formation water composition that indicates the dissolution of silicate minerals from each rock sample is  $29.8 \times 10^{-2}$  mmol/kg-rock/day for basalt,  $7.77 \times 10^{-2}$  mmol/kg-rock/day for Tsugawa green tuff,  $5.44 \times 10^{-2}$  mmol/kg-rock/day for Ushikiri green tuff and  $33.1 \times 10^{-2}$  mmol/kg-rock/day for Daijima green tuff at the temperature of 50°C.

The simulations on long-term CO<sub>2</sub> fixation efficiency (mineral trapping) in the CO<sub>2</sub> reservoir by using Ca, Mg and Fe release rates calculated from experiments were conducted. On the assumption that 1: CO<sub>2</sub> injection rate to be 2,000 ton/day 2: injection time period to be 50 years (total amount of injected CO<sub>2</sub> is 36,500,000 t) 3: target aquifer porosity 20% 4: CO<sub>2</sub> density 500 kg/m<sup>3</sup> 5: injected CO<sub>2</sub> to groundwater volume ratio 1:2, the time required for mineral fixation of 36,500,000 tons of CO<sub>2</sub> is simulated to be about 180 years for basalt, about 5,100,000 tons of CO<sub>2</sub> fixed as a carbonate mineral in 200 years for Tsugawa green tuff, about 22,000,000 tons of CO<sub>2</sub> fixed in 200 years for Ushikiri green tuff and 3,900,000 tons of CO<sub>2</sub> fixed in 200 years for Daijima green tuff. at the temperature of 50°C.

These results indicate that the mineral trapping rate in CO<sub>2</sub> reservoir is much faster than the results of previous studies and that geochemical trapping (mineral trapping) is an important mechanism not only for long-term (10<sup>3</sup> - 10<sup>4</sup> years) security but also for shorter-term (- 10<sup>2</sup> years) security of CO<sub>2</sub> aquifer storage and is a significant indicator for the selection of potential storage candidate site.

キーワード: CCS, 二酸化炭素地中貯留, 水 岩石反応, グリーンタフ, 玄武岩

Keywords: CCS, CO<sub>2</sub> geological storage, water-rock interaction, Green-Tuff, Basalt

## 淡路島地下への空気の注入試験における地震波アクロスを用いたタイムラプス実証試験 (その1) Time-lapse field experiment using seismic ACROSS at the air injection into the shallow ground in Awaji Island-I

笠原 順三<sup>1\*</sup>, 伊藤慎司<sup>2</sup>, 藤原友宏<sup>2</sup>, 鶴我 佳代子<sup>3</sup>, 羽佐田 葉子<sup>4</sup>, 生田 領野<sup>1</sup>, 藤井 直之<sup>1</sup>, 山岡 耕春<sup>5</sup>, 西上 欽也<sup>6</sup>, 伊藤 潔<sup>6</sup>

KASAHARA, Junzo<sup>1\*</sup>, Shinji Ito<sup>2</sup>, Tomohiro Fujiwara<sup>2</sup>, TSURUGA, Kayoko<sup>3</sup>, HASADA, Yoko<sup>4</sup>, IKUTA, Ryoya<sup>1</sup>, FUJII, Naoyuki<sup>1</sup>, YAMAOKA, Koshun<sup>5</sup>, NISHIGAMI, Kin'ya<sup>6</sup>, ITO, Kiyoshi<sup>6</sup>

<sup>1</sup> 静岡大学理学部, <sup>2</sup> NTT データ CCS (株), <sup>3</sup> 東京海洋大学, <sup>4</sup> 大和探査(株), <sup>5</sup> 名古屋大学環境科学, <sup>6</sup> 京都大学防災研究所

<sup>1</sup> Faculty of Science, Shizuoka University, <sup>2</sup> NTTdataCCS Co. Ltd., <sup>3</sup> Tokyo University of Marine Science and Technology, <sup>4</sup> Daiwa Exploration and Consulting, Co. Ltd., <sup>5</sup> Environmental Sciences, Nagoya University, <sup>6</sup> EPRI, Kyoto University

### 1. はじめに

地中温暖化対策のために地中貯留したCO<sub>2</sub>の状態の把握、石油・天然ガス貯留層の挙動、地震発生域での流体の移動、火山溶融体の状態の把握などは地下の4D観測やタイムラプスと呼ばれ、大変重要であるが観測技術はまだ確立していない。

本講演では、長期にわたり極めて安定で連続的な振動を生成できる弾性波アクロス震源を用いた地下のタイムラプス監視技術の開発について報告する。

1 震源と地震計アレーによって地下の変動域をイメージできることをシミュレーションによって示してきたが(Kasahara et al., 2011a, 羽佐田他, 2011)、観測でそれを実証するため、2011年2月20日~3月10日まで淡路島野島断層付近で実証実験を行った。過去のACROSSを用いた時間変化の観測では、異常変化が起きた原因や場所の特定が不十分で、地表の変化と真の地下の変化の区別が明瞭でなかった。そこで、1) 地下100mへ空気を注入し人工的な原因によって生じた時間変化を検証すること、2) 時間変化した場所を特定すること、を目的として検証実験を行った。

### 2. フィールド実験とデータ処理

2011年2月20/3月10日に淡路島野島断層付近において2台のアクロス震源と、32台の3成分地震計および800mポアホール成分地震計を用いて実験を行った。この期間中の5日間、地下100mに空気を注入した。震源として、鉛直回転軸をもつ名古屋大学保有の従来型のアクロス震源(ACROSS-V)と、新たに製作した水平回転軸のアクロス震源(ACROSS-H)の2機を同時に稼働した。ACROSS-Hでは10-50Hzの振動が可能であるが、本実験はその最初の稼働試験も兼ねていたため、10-35Hzを用いた。ACROSS-Hは1時間の間に10-35Hzのスweepを100秒単位で32回繰り返して、400秒間は休止期間とし、1時間毎に交互に正回転、逆回転を繰り返した。

地震計としてLennarz-1Hz、近畿計測KVS300-2Hz、Sercel-L28-4.5Hz、CDJ-2SC-1Hzを観測に用いた。地震計の記録は24ビットA/DのデータロガーHK9550を用い200Hzサンプリングおよび、また24ビット相当の近畿計測のデータロガーEDR-3000を用い250Hzサンプリングで収録した。データロガーのサンプリングはGPS時刻基準に合わせた。今回4種類の地震計を用いたが、加震周波数は10Hz以上であるのでタイムラプスの観測には問題が無いだろう。

ACROSS-Hは淡路島の野島断層周辺の約1000m四方の北東にあり、ACROSS-Vは南東に置いた。3成分地震計32地点と京都大学が保有する800mポアホール地震計を観測に用いた。地下100mの大阪層群中に5日間で合計80tonの空気を21気圧で注入した。本報告はACROSS-Hを用いた結果について報告する。

解析では400秒間のデータを32個スタッキングし1時間のデータとした。正回転と逆回転に対する各観測記録の1時間のスタッキング結果を複素周波数領域で合成し上下加震と水平加震に対する応答を求めた(Kasahara et al., 2011b)。上下加震ではP波が、水平加震ではS波が卓越する。観測記録スペクトルに対し理論加震スペクトルを用いてデコンボリューション処理をすることにより震源と観測点での上下、南北、東西成分に対する伝達関数を得た。

### 3. 結果

32台の地震計のうち1台は動作が不良であったが、それ以外の地震計すべてに注入後大きな波形変化が現れた。

最も大きな変化は#6,7の観測点であり、注入後約1日後にP波、S波の初動走時、後続波走時及びそれらの振幅に大きな変化が現れた。特に、注入前との波形の差分においてすべての観測点でその変化が明瞭であった。

800mポアホール地震計は、注入地点から300m以上も離れ、震源と注入点を結ぶ経路にもないにもかかわらずのデータも差分において変動をしめした。

これらの観測された変動はP,S初動よりもそれぞれの後続波に顕著である。注入地点から200m以上離れた地点でも注入開始直後に変化を示した。変化を示した波群は大阪層群より深い地層と考えられる。

HRE27-04

会場:104

時間:5月20日 14:30-14:45

逆伝搬法より地下の変動のイメージングを行った。その結果、注入開始後8時間は変動の中心は注入地点直下にあるが、時間とともに東側に拡散する様子が見られた。

#### 4. 結論

注入実験からこの方法がタイムラプスの観測に極めて有用であることを実証できた。予算の制約から注入深度は浅かったが、数キロの深さの石油/天然ガス、CO<sub>2</sub>貯留層ばかりでなく、地震発生域、火山溶融体の状態の常時監視にも極めて有力であると考えられる。

#### 謝辞

本研究はJCCP事業費によって行えたことに感謝する。

キーワード: CCS, 地球温暖化, タイムラプス, 逆伝搬, CO<sub>2</sub>-EOR, 4D

Keywords: CCS, Global Climate Change, Time Lapse, Back propagation, CO<sub>2</sub>-EOR, 4D

## CO<sub>2</sub> 地中貯留サイトにおける微小振動観測 - 米国 Cranfield 油田の初期観測結果について -

### Microseismic monitoring at CO<sub>2</sub> geological storage site - Initial data results observed at Cranfield in the U.S.-

高岸 万紀子<sup>1\*</sup>, 橋本 励<sup>1</sup>, 堀川 滋雄<sup>2</sup>, 楠瀬 勤一郎<sup>3</sup>, 瀧澤孝一<sup>1</sup>, 薛 自求<sup>1</sup>  
TAKAGISHI, Makiko<sup>1\*</sup>, HASHIMOTO, Tsutomu<sup>1</sup>, HORIKAWA, Shigeo<sup>2</sup>, KUSUNOSE, Kinichiro<sup>3</sup>, Koichi Takizawa<sup>1</sup>, XUE, Ziqiu<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 公益財団法人地球環境産業技術研究機構, <sup>2</sup> サンコーコンサルタント株式会社, <sup>3</sup> 独立行政法人産業技術総合研究所  
<sup>1</sup>RITE, <sup>2</sup>Suncoh Consultants Co., Ltd., <sup>3</sup>AIST

CO<sub>2</sub> 地中貯留における微小地震の発生可能性が議論されている。CO<sub>2</sub> 圧入によって生じる微小振動は、海外の CO<sub>2</sub> 圧入サイトによる事例を踏まえるとたとえ発生しても極く微小なものと想定されるが、CGS における安全性評価、社会的受容の観点からサイトでのモニタリングが必須である。

RITE では、ローレンスバークレー国立研究所 (LBNL) およびテキサス地質研究所 (BEG) と連携・協力して、CO<sub>2</sub> 圧入時の微小振動に関する調査研究を進めている。米国の大規模 CO<sub>2</sub> 圧入サイトで微小振動を長期観測し、CO<sub>2</sub> 圧入と微小振動との関連性 (微小振動の有無, 規模, 分布状況) について調査研究を行うとともに、本サイトで得られた知見をもとに、将来、わが国における CCS 実証試験や CCS 実用化時に必要な微小振動観測手法について検討・構築することを目的としている。

微小振動観測サイトはミシシッピ州の Cranfield 油田である。本油田は CO<sub>2</sub>-EOR による原油回収が行われており、これまでにおよそ 300 万 t の CO<sub>2</sub> が圧入されている。本サイトに 6 台の 3 成分微小振動計からなる半径約 3km の観測網を構築し、2011 年 12 月から微小振動の観測を行っている。本発表では、Cranfield における微小振動観測の概要を紹介するとともに、取得された初期データの結果について報告する。

キーワード: CO<sub>2</sub> 地中貯留, 微小地震観測

Keywords: CO<sub>2</sub> geological storage, Microseismic monitoring

## CO<sub>2</sub> 地中貯留のシール品質に対する砂岩脈特性の影響検討シミュレーション Numerical Simulation of the Effects of Sandstone channels Properties on the Seal Integrity in Geological Storage of CO<sub>2</sub>

加野 友紀<sup>1\*</sup>, 石戸 経士<sup>1</sup>

KANO, Yuki<sup>1\*</sup>, ISHIDO, Tsuneo<sup>1</sup>

<sup>1</sup>産総研 地圏資源環境研究部門

<sup>1</sup>Geological Survey of Japan/AIST

CO<sub>2</sub> 地中貯留は地球温暖化を抑制するための早期対策技術として考えられている。CO<sub>2</sub> の貯留層には枯渇油ガス田や不採掘炭層、塩水帯水層等が挙げられ、国内及び国際的に試験・実証プロジェクトが行われている。我が国では背斜構造を持たない帯水層（一般帯水層と称する）において、水溶性天然ガスが長期に渡って貯留されていることが知られており、貯留ポテンシャルの観点からも一般帯水層における CO<sub>2</sub> の地中貯留が検討されてきた。

背斜構造が存在しない場合においても、上部層の高遮蔽性が CO<sub>2</sub> プルームの広がりに対し十分連続性を有する場合、圧入層内に全ての CO<sub>2</sub> を貯留することが可能であると考えられる。しかしマクロに平均化した浸透率が十分低い場合においても、難透水の泥岩に砂岩脈が貫入しているような場合には均質な多孔質層と比べて CO<sub>2</sub> に対する遮蔽性が大きく劣る可能性がある。加野・石戸（2011）はダブルポロシティモデルをシール層に適用したシミュレーションにより、難透水性泥岩中の砂岩脈の存在が流動挙動を大きく変化させることを示した。

本研究では泥岩中砂岩脈の体積分率や脈間距離および浸透率または泥岩との浸透率比等が CO<sub>2</sub> の遮蔽性にどのように影響するかをシミュレーションにより検討する。

シミュレーションで使用した放射流モデルは、水平方向に 20 km、鉛直方向に 2 km の領域を対象とし、上端には温度 15℃、圧力 0.1 MPa の地表条件を設定した。最上部の 300 m には未固結堆積物が分布し、その下に砂泥互層が分布する。泥岩層のマクロ浸透率は多孔質媒質であれば CO<sub>2</sub> を十分遮蔽できる値とし、砂岩脈の存在や物性の感度解析を行った。水の相対浸透率は van Genuchten 型、CO<sub>2</sub> の相対浸透率は Corey 型で表されるものとした。また、毛管圧は van Genuchten 型を選択した。CO<sub>2</sub> は深度 950 m から 1000 m に年間 100 万トンのレートで 50 年間圧入されるものとした。

このモデルを使用して、圧入期間の 50 年間及びその後 2950 年間における CO<sub>2</sub> プルームの広がりや地層水への溶解量等に関するシミュレーションを行った。計算には、汎用貯留層シミュレータ STAR と状態方程式 SQSCO<sub>2</sub> を用いている。

キーワード: CO<sub>2</sub> 地中貯留, 塩水帯水層, ダブルポロシティモデル, 数値シミュレーション

Keywords: Geological storage of CO<sub>2</sub>, saline aquifer, double porosity model, numerical simulation

## 数種の泥岩における超臨界 CO<sub>2</sub> のスレッシュリョルド圧力測定法に関する検討 Study of measuring method for supercritical CO<sub>2</sub> threshold pressure on several mudstone

木山 保<sup>1\*</sup>, 薛 自求<sup>1</sup>  
KIYAMA, Tamotsu<sup>1\*</sup>, Ziqui Xue<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 公益財団法人地球環境産業技術研究機構

<sup>1</sup> Research Institute of Innovative Technology for the Earth

地球温暖化防止策の一つの CO<sub>2</sub> 地中貯留において、超臨界 CO<sub>2</sub> は地層水より密度が低いので、CO<sub>2</sub> が安定的に貯留されるには、貯留層の上部にシール性能を有する遮蔽層が必要である。低浸透率の泥岩層などで構成される遮蔽層は固有のスレッシュリョルド圧力を示し、CO<sub>2</sub> 圧入圧がこれを超えない限り遮蔽層に CO<sub>2</sub> が浸入することはないので、スレッシュリョルド圧力の適正な評価が CO<sub>2</sub> 地中貯留の安全性や経済性に重要である。スレッシュリョルド圧力測定法のうち、段階昇圧法は信頼性が高いが試験時間が長期化しやすい。残差圧力法は局所的なスレッシュリョルド圧力を反映し過小評価の可能性がある。動的流動法は流量変化から間接的にスレッシュリョルド圧力を推定している。本報告では泥岩を対象に試験を実施し、試験時間が短く、差圧変化からスレッシュリョルド圧力を評価する定流量排水法を提案する。

試験に用いた泥岩は国内数か所の露頭で採取し、円柱状に整形した。すべての試験において間隙流体圧は 10MPa、温度は 40 °C とし、CO<sub>2</sub> は超臨界相となる。各試験の準備段階において、定水位法による浸透率測定を実施した。供試体は上下をエンドピースで挟み、側面をシリコン樹脂などで被覆して封圧媒体の浸入を防止した。供試体とエンドピースの間に SUS316 網を挟んだ。一部の試験では供試体の側面にひずみゲージを貼付した。供試体を圧力容器に収納し、容器に巻き付けたヒータで温度を設定し、シリンジポンプで封圧を設定した。CO<sub>2</sub> の注入、水の注入および供試体から排出された流体の制御にそれぞれ個別のシリンジポンプを配置した。これらを 40 °C の恒温室に収め、制御および計測は LabVIEW により室外から行った。

泥岩 A 試験 I は、封圧 20MPa で段階昇圧法で実施した。水の注入から CO<sub>2</sub> の注入に変更して数時間後に排出流量がゼロとなったが、これはデッドボリュームの水がすべて供試体に浸入し CO<sub>2</sub> が供試体端面に到達してスレッシュリョルド圧力が発現したことを示唆する。その後、6 時間ごとに注入側圧力を 0.1MPa ずつ増加し、CO<sub>2</sub> 注入開始から 70 時間近く経過し、差圧が 1.24MPa に達したところで排出が開始した。ここでスレッシュリョルド圧力は 1.24MPa と評価される。

泥岩 A 試験 II は、封圧 12MPa で定流量排水法で実施した。浸透率測定において、0.12MPa の差圧で 0.004ml/min の流量が確認されたので、排出流量を 0.004ml/min に制御して定流量排水法を開始した。開始直後は 0.12MPa の差圧が観測され、デッドボリュームの水が供試体に浸入していることを示唆する。4 時間後に排出側圧力が急激に減少し、10 時間後に差圧は 0.71MPa を示した。CO<sub>2</sub> が供試体の端面に到達してスレッシュリョルド圧力が発現し、差圧がスレッシュリョルド圧力を超えて CO<sub>2</sub> が浸入するまで排出側の圧力が低下したと考えられる。差圧 0.12MPa から 0.71MPa までの 0.59MPa の差圧変化がスレッシュリョルド圧力に相当すると考えられる。

泥岩 A 試験 III は、封圧 20MPa で定流量排水法で実施し、注入側と排出側の 2 測点でひずみ変化を観測した。試験と同様に排出側の圧力が急激に減少し、スレッシュリョルド圧力は 0.85MPa と評価された。排出側圧力が減少すると同時に、位置の異なる 2 箇所で同様に圧縮ひずみを示した。これは CO<sub>2</sub> が端面に到達してスレッシュリョルド圧力が発現し、間隙圧が一様に減少したことを示唆する。また排出流量減少から 3 時間後に注入側の測点で膨張ひずみが、11 時間後に排出側の測点で膨張ひずみが観測された。供試体に浸入した CO<sub>2</sub> が測点の位置に到達し、間隙圧が上昇して膨張ひずみが観測されたと考えられる。

試験 I、試験 II および試験 III の浸透率は、それぞれ 3.1、9.3 および 6.5 μダルシーであった。そこで Thomas らのようにスレッシュリョルド圧力を浸透率の逆数で整理したところ、両対数上で明瞭な正の相関が認められた。超臨界 CO<sub>2</sub> のスレッシュリョルド圧力は Thomas による N<sub>2</sub> のスレッシュリョルド圧力より高い値を示し、西本らの報告に調和的である。

試験 I の段階昇圧法で CO<sub>2</sub> 注入から 70 時間後にスレッシュリョルド圧力が評価できたのに対し、試験 II の定流量排水法では 10 時間で評価され、試験時間短縮の可能性が確認された。ひずみの観測は CO<sub>2</sub> の挙動の解釈に有効であり、原位置の CO<sub>2</sub> 地中貯留においても光ファイバーなどを用いた計測技術の展開が期待される。

謝辞：本研究は、経済産業省委託事業「二酸化炭素回収貯蔵安全性評価技術開発事業」の一環として行われた。

1) L. K. Thomas, et al.: Soc. Petrol. Eng. J., Vol.8 (1968), 174-184.

2) 西本壮志他：物理探査, Vol.62 No.4(2009), 421-436.

キーワード: スレッシュリョルド圧力, 超臨界 CO<sub>2</sub>, キャップロック, 泥岩

Keywords: Threshold Pressure, supercritical CO<sub>2</sub>, cap rock, mudstone

## 定常法による相対浸透率測定 : X線 CT スキャンと物質収支法により測定された水飽和度の比較

### Water saturation estimated by X-ray CT scan and mass balance methods during relative permeability measurements

小暮 哲也<sup>1\*</sup>, 西澤 修<sup>1</sup>, 千代延 俊<sup>1</sup>, 矢崎 至洋<sup>1</sup>, 柴谷聖司<sup>1</sup>, 薛 自求<sup>1</sup>

KOGURE, Tetsuya<sup>1\*</sup>, NISHIZAWA, Osamu<sup>1</sup>, CHIYONOBU, Shun<sup>1</sup>, YAZAKI, Yukihiko<sup>1</sup>, Seiji Shibatani<sup>1</sup>, XUE, Ziqiu<sup>1</sup>

<sup>1</sup> (公財)地球環境産業技術研究機構

<sup>1</sup>RITE

二酸化炭素回収貯留 (CCS) 事業において、深部帯水層に圧入された CO<sub>2</sub> の挙動を予測することは事業の安全性を評価するうえできわめて重要である。CO<sub>2</sub> の挙動を予測するためには、帯水層内の水と CO<sub>2</sub> の相対的な流動特性を知る必要がある。通常、数値計算により多孔質媒体内の挙動予測を行うために、多相流の相対浸透率曲線が用いられる。CCS 事業では、CO<sub>2</sub> の圧入により地層内の水と CO<sub>2</sub> の割合が大きく変化する。貯留層内で CO<sub>2</sub> は超臨界状態となるため、CO<sub>2</sub> の挙動シミュレーションでは水 - 超臨界 CO<sub>2</sub> 系の相対浸透率曲線が必要となる。

室内試験により貯留層の温度・圧力条件を再現して水 - 超臨界 CO<sub>2</sub> 系の相対浸透率が測定されれば、貯留層内の CO<sub>2</sub> 挙動をより正確に予測できる。しかし、石油天然ガス開発分野における水 - 油系の相対浸透率に比べ、水 - 超臨界 CO<sub>2</sub> 系の相対浸透率を正確に測定した研究例はきわめて少ない。多くの研究の場合、岩石コアから流出する水と CO<sub>2</sub> の体積を気液分離装置の中で測定する物質収支法が用いられる。このとき、気液分離装置は CO<sub>2</sub> が超臨界状態を保てるように耐圧化されている必要がある。耐圧化されていない気液分離装置を用いた測定では、減圧により CO<sub>2</sub> が超臨界状態から気体に相変化し、体積を正確に測定できない。さらに、圧力低下は脱ガス作用を引き起こし、水に溶解していた CO<sub>2</sub> が気液分離装置中に解放されて CO<sub>2</sub> の体積が増加する。多くの研究では耐圧化されていない気液分離装置が用いられているため、我々は温度・圧力をコントロールできる気液分離装置を開発し、ガラス窓を通して水と CO<sub>2</sub> の界面変化量を記録した。これにより岩石コア内の物質収支を正確に計算することができ、水飽和度の算出が可能となった。

物質収支法以外に水飽和度を算出するための手法として、X線 CT スキャナーも使用される。X線 CT スキャナーの解像度が向上していることから、X線 CT スキャナーを用いた相対浸透率測定が近年増えている。

このように水飽和度の算出方法として物質収支法と X線 CT スキャナーが多く利用されるが、二つの手法によって得られた水飽和度の大きさや正確性は議論されておらず、どちらがより適した手法であるか不明である。そこで我々は一つの岩石コアの相対浸透率を測定し、物質収支法と X線 CT スキャンにより水飽和度を算出した。その結果、物質収支法と X線 CT スキャンにより得られた水飽和度は、多少の違いはあるもののほぼ同じ値であった。したがって、物質収支法と X線 CT スキャンは両者とも岩石コア内の水飽和度を正確に算出できると考えられる。理想的には、得られた値のクロスチェックを行うため、同一測定において両者を同時に用いることが望ましいと考えられる。

キーワード: 相対浸透率測定, 水 - 超臨界 CO<sub>2</sub> 系, 水飽和度, 物質収支法, X線 CT スキャン

Keywords: relative permeability measurements, water-supercritical CO<sub>2</sub> system, water saturation, mass balance methods, X-ray CT scanning

## 超音波およびCBL検層による長岡CO<sub>2</sub>圧入サイトでの坑井健全性評価の試み An attempt of evaluation of well integrity at Nagaoka site using ultrasonic logging and CBL data

中島 崇裕<sup>1\*</sup>, 薛自求<sup>1</sup>, 渡辺二郎<sup>2</sup>, 伊藤喜則<sup>2</sup>, 坂下晋<sup>1</sup>

NAKAJIMA, Takahiro<sup>1\*</sup>, Ziqiu Xue<sup>1</sup>, Jiro Watanabe<sup>2</sup>, Yoshinori Ito<sup>2</sup>, Susumu Sakashita<sup>1</sup>

<sup>1</sup>(公財)地球環境産業技術研究機構, <sup>2</sup>株式会社 物理計測コンサルタント

<sup>1</sup>RITE, <sup>2</sup>Geophysical Surveying Co., Ltd.

For the safety of CO<sub>2</sub> sequestration, injected CO<sub>2</sub> must be trapped in the underground and not be allowed to leak to the surface. Well integrity is one of the essential problems because potential leakage could occur along the well (Celia et al., 2004). Cement between the casing and the formation will be the first material exposed to CO<sub>2</sub> among the well components, so the state of cement in a CO<sub>2</sub> rich environment has been studied (e.g., Kutchko et al., 2007). It is important to measure and monitor the integrity of wells that are exposed to CO<sub>2</sub>. This paper reports well integrity examined by the ultrasonic and sonic logging at Nagaoka CO<sub>2</sub> injection site.

Ultrasonic tool is used to measure the internal condition of the casing, the thickness of the casing, and the acoustic impedance of the material outside the casing. Observed reflected wave was different at the part of iron and FRP casing. The amplitude of the first reflection at the part of FRP casing was smaller since the impedance contrast between casing and water is smaller. We evaluated the impedance of the cement from the analysis of the amplitudes of the multiple reflections.

CBL is used to measure the bond between the casing and the cement, and the bond between the cement and the formation. The bond between the cement and the casing can be evaluated from the amplitude of the first reflection. The time-lapse observation of the CBL showed that the amplitude became smaller after the cementing. This means that the bond became better. The waveform showed the reflection from the interface between the cement and the formation. By combining the results of ultrasonic tool and some numerical calculations we would extract more information about the formation.

We note other logging program at Nagaoka. About 40 times sonic logging at Nagaoka from the injection period to the post injection period showed temporal change with the correlation of CO<sub>2</sub> saturation. The sonic velocity decreased when CO<sub>2</sub> arrived at the observation well. Another logging program is the sampling of the formation water using cased-hole dynamics tester (CHDT). This logging provides the information on chemical reaction and permeability. These results would be used for the interpretation of the state of the materials near the well.

We investigated the well integrity of the observation well at Nagaoka by the combination of the above logging method. The analysis showed that there is no clear evidence of the CO<sub>2</sub> leakage at Nagaoka.

キーワード: CO<sub>2</sub> 地中貯留, 坑井健全性, 長岡, 音波検層

Keywords: CO<sub>2</sub> geological storage, well integrity, Nagaoka, sonic logging

## 長岡サイトのCO<sub>2</sub>挙動に対する岩相と不均質性の影響

### Impact of lithofacies and reservoir heterogeneity on distribution of CO<sub>2</sub> at Nagaoka Pilot Site

千代延 俊<sup>1\*</sup>, 中島崇裕<sup>1</sup>, Zhang, Yi<sup>1</sup>, 辻 健<sup>2</sup>, 薛自求<sup>1</sup>

CHIYONOBU, Shun<sup>1\*</sup>, Takahiro NAKAJIMA<sup>1</sup>, Yi ZHANG<sup>1</sup>, Takeshi TSUJI<sup>2</sup>, Zique XUE<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 地球環境産業技術研究機構, <sup>2</sup> 京都大学

<sup>1</sup>RITE, <sup>2</sup>Kyoto University

The Nagaoka pilot site is located in the onshore area of Nagaoka oil field in the Niigata plain of central Honshu on the Japan sea side of central Japan. The onshore deep saline aquifer utilized for the CO<sub>2</sub> storage project is located near the city of Nagaoka. The pilot site and the target formations were selected based on the geological information. The selected formation was the early Pleistocene Haizume Formation, around 60m thick and 1100m below the ground surface. Cores of the Haizume Formation at Nagaoka from well IW-1 show realistic reservoir characterization with litho-stratigraphic architecture.

To geological modeling and assess CO<sub>2</sub> distribution, 3D seismic schemes were applied in the Nagaoka site, which included 4D seismic monitoring. Seismic attributes analysis is a popular and important method to predict the distributions of reservoir rock properties such as lithofacies, porosity, density, and thickness. Although 3D seismic survey has been executed, the distribution of lithofacies and the heterogeneity in reservoir layers remain unclear across the Nagaoka site because there are only few wells drilled. Therefore, we described the geomodeling framework and simulation studies that were applied to micro and macro scale reservoir modeling with realistic litho-stratigraphic architecture at the Nagaoka site.

Lithofacies relations and much of the heterogeneity in Nagaoka aquifer reservoirs are related to the stacking of depositional sequences. To investigate the challenges of the spreading CO<sub>2</sub>, a detailed reservoir heterogeneity model was set up based on analysis of 45 cores. The Haizume Formation consists of predominantly sandstone, alternating beds of siltstone and sandstone, siltstone, sandstone-argillaceous, and conglomerate. The marine deposits and consists of numerous thin shales (siltstone to mudstone) form the majority of heterogeneities in Haizume Formation. Heterogeneity is mainly controlled by the distribution of sandstones embedded in numerous alternated facies. The CO<sub>2</sub> reservoir formation in this site (ca. 20m thick) is divided into some independent zone layers with millimetric to decimetric laminations of sandstone, siltstone and mudstone, silts and sands alternate, conglomerate within sequences from metric to a few metrics. In such a heterogeneous formation, the connectivity of permeable rocks is clearly of major concern for predicting of CO<sub>2</sub> storage potential. The realistic modeling of these connectivities is thus required to plan future developments, to understand and predict CO<sub>2</sub> behaviors.

This paper presents the realistic modeling strategy that was applied to Nagaoka site. The modeling strategy is multi steps, with first a geologically constrained generation of facies distributions, and second, simulations of spreading CO<sub>2</sub> variations with the measured permeability within the facies distributions. These descriptions were incorporated into the model at a resolution, which ensured capture of the most significant heterogeneities. The detailed reservoir model matched well log and core performance in this site. The detailed reservoir model and results of simulation matched the monitoring data from well and field more closely than the previous large scale models. The modeling technique also allows accounting for larger scale constraints, such as field wide variations of facies frequencies and main directions of spatial continuity.