

分散型CO₂地中貯留の可能性について

鈴木 健一郎 三好 悟
人見 尚 下山 真人

Feasibility Study on Distributed CO₂ Storage

Kenichiro Suzuki Satoru Miyoshi
Takashi Hitomi Masato Shimoyama

Abstract

The feasibility of a system that stores CO₂ by injection with gas phase and dissolution in shallower depths has been studied. Based on this feasibility study, we have the following conclusions: 1) Gaseous CO₂ by microbubbles was dissolved in water rapidly. But there were still some unexplained points such as the ratio of residual bubbles. 2) There are potential storage sites with adequate storage amount in the coastal areas of Japan. Storage potentials of 2 model sites at depths between 300 and 500m were estimated 24, and 150Mt-CO₂, respectively. 3) CO₂ dissolved water can be injected at a pressure of about 1 MPa with an injection rate of 10,000 t-CO₂ per year per injection well without damage on the storage and sealing layer. Then it was stored reservoir stably since CO₂ dissolved water is slightly heavier than underground water. 4) The system is economically feasible provided the cost is kept low by small scale storage in a locally dispersed style in the vicinity of emission areas.

概要

分散型CO₂地中貯留は、小規模排出源を対象としてCO₂を溶解状態で浅部地層（深度300m～500m）に貯留する方法であり、大規模集中型と比べてコストメリットがあると考えられている。この方法の成立可能性を検討した結果、1)マイクロバブルは急速に地下水に溶解するが、バブルの残留割合といった説明できない点も残された。2)日本国内有望貯留可能領域は多くの沿岸域に存在し、十分な貯留量が確保できること。そのうち2つのモデルサイトの300m～500m深度での貯留可能量は、240万t-CO₂と1.5億t-CO₂であった。3)溶解状態で年間1万t-CO₂の注入であったら、1MPa程度の注入圧で貯留層および遮蔽層に損傷を与えることなく、溶解水を注入できる。CO₂は地下水より若干重いので安定的に貯留される。4)分散型で排出源近傍での小規模貯留によりコストを抑えることで経済的な方法として成立性があることを示した。

1. はじめに

ハワイ島マウナロア観測所で2013年5月9日、大気中の二酸化炭素濃度が初めて400ppmを超え、地球温暖化への警鐘が鳴らされた。一つの対策方法としてCCS（Carbon Dioxide Capture and Storage）にさらなる期待がかかってきた。CCSには、深部塩水帯水層の大容量領域に超臨界状態のCO₂を圧入する大規模集中型CCS（年間貯留量10万～100万t-CO₂）とCO₂排出源近傍の浅部帯水層に溶解して貯留する分散型CCS（年間貯留量10万t-CO₂以下）の方法が考えられている。

CCSには、発生CO₂の分離・回収、輸送、地下深部の岩石への圧入が含まれる。特に地下深部への岩盤の圧入を考えるとFig.1に示すような選択肢がある。天然ガス精製、合成燃料生産及び肥料生産産業で世界中で8件のCCSプロジェクトが操業しており、そのうち5件が石油増進回収（EOR）、3件が深部塩水層貯留となっている。これらのうち、天然ガスに含まれるCO₂を分離して高純度にして価値を上げる、CO₂税が課せられているため岩盤に圧入して石油を増産するというビジネスとしてこれ

らCCSは成立している。世界ではその他、実施や検証プロジェクトで75件のCCSプロジェクトが存在しており、わが国でも苫小牧で実証が始まっている。大規模CCSの課題は、分離・回収もさることながら輸送のための施設が課題となっており、操業中のプロジェクトでも300km以上のパイプラインを敷設していることである。今後の温暖化対策および火力発電所の増設に伴い、少量を排出源近傍で貯留するFig.2に示すような分散型CCSの成立性を著者らは検討した。少量を排出源近傍の浅地層（深度300m～500m）に、マイクロバブル化したCO₂（以下、CO₂マイクロバブルと略す）を地下水に溶解させて貯留する方法についての成立性検討では、マイクロバブルによる溶解法の確立、我が国の有望な貯留層の存在、それらの貯留層の貯留可能量評価、CO₂溶解水の挙動予測、規制への対処、経済性などの項目を対象とした。

ここでは、上記各項目に対して行った検討結果から、分散型CCSの成立性が認められたのでそれについて報告する。

2. CO₂マイクロバブル地中貯留の概念

CO₂マイクロバブル地中貯留（以下、CMSと呼ぶ）は、Fig.2に示すように、地上または注入井内で地下水中にCO₂マイクロバブルを圧入して溶解水を貯留層に貯留する方法である。この方法によれば地下水より密度の高いCO₂溶解水は下方に沈むためFig.1の灰色の層、遮蔽層がなくても貯留することが可能である。一方、地下深部1000m以深を対象として高压下でCO₂を貯留する方式では、CO₂は超臨界状態となり、その密度は水のおよそ半分となるため浮力が生じ、それに抗するキャップロックの存在が不可欠となる。そのため貯留可能な地層も限られるのが現状である。

次に、CO₂溶解水を作成するためのマイクロバブル法について説明する。マイクロバブルとは、直径が1mmの1/1000以下、すなわちマイクロメータオーダーの微細な気泡である。明確な径の定義は曖昧であるが、通常の気泡とは異なった性質が現れる直径50μm程度以下からといわれている。マイクロバブルの一般的特徴として次の5点が挙げられる³⁾。

- ① 界面面積/総体積が大きい
- ② 浮上速度が遅い（浮力が小さい）
- ③ 内部圧力が高い
- ④ 表面が負に帯電している
- ⑤ 自己圧壊性を有する（圧壊時にフリーラジカル（不対電子をもつ分子，原子，またはイオン）を発生する）

温度，圧力，溶媒の化学成分により水に溶解するCO₂の量は理論的に一意に決まる。これをCO₂の水への飽和溶解度とする。マイクロバブルを用いた場合には、短時間で飽和CO₂溶液が作成できることが期待される。

溶解は、気体側から液体側に気液界面を気体が通過する現象である。これは二重境膜説で簡略にモデル化されることが多い。青木ら⁴⁾によると気体の大気から水中へ二酸化炭素が溶解するとき、気相と液相の境界に薄い境膜が形成され、この境膜が物質移動の抵抗となる。水への溶解度の低い気体の場合、液境膜での拡散速度が律速となる。ここで、液境膜拡散による反応速度は、大気と平衡状態にあるH₂CO₃濃度をC_sとおき、水中のH₂CO₃濃度であるCとの差の一次反応で表現できる。すなわち、

$$\frac{dC}{Dt} = \left(\frac{D_{CO_2}}{\delta} \right) (A/V) (C_s - C) \quad (1)$$

ここで、K：速度係数。理論的には、Kは以下の式で表現される。

$$K = \left(\frac{D_{CO_2}}{\delta} \right) (A/V) \quad (2)$$

ここで、D_{CO₂}は液境膜拡散係数（1.97×10⁻⁵ cm²/s）であり、Donaldson and Nguyen(1980)が提案した値で一般的にデータベースとして用いられているものである。δは液境膜厚さ（攪伴等の影響のない静置状態では40μm）、Aは気液接触面積、Vは水の体積である。

式(2)をt=0のときC=C₀、t=tのときC=Cとして解くと、

$$C = C_s - (C_s - C_0) \exp(-Kt) \quad (3)$$

となり、この式は、時間の経過にともなうH₂CO₃濃度の変化を示している。

この関係から、マイクロバブルによる溶解速度を計算する。マイクロバブルの効果は、気液接触面積に置き換えられ、マイクロバブルの径を100μmで一様分布と仮定すると、結局、1ml当たりの発生個数、すなわちバブル密度に依存する。これをパラメータとし、液境膜拡散係数、液境膜厚は上記の値を採用して計算する。

1ml当たり1,000個と100個のマイクロバブルが発生する場合、A/V（表面積/1ml）はそれぞれ、0.03と0.003となる。A/V=0.05も含めて（3）式をプロットするとFig.3のようになる。

宮澤ら⁵⁾のデータから、溶解実験の結果はFig.4のようである。大気圧中でのCO₂の溶解度は約1.7g/Lであるから、Fig.4の上のプロットであるマイクロバブル注入では100分で飽和し、その濃度は大気圧のCO₂溶解度とほぼ一致する。しかし、バブリング法（数mm～30mm）では、250分では定常にならない。マイクロバブルとミリバブルでは、溶解量および溶解速度において顕著な差が生じ、マイクロバブルによる注入では非常に効率的な溶解が可能であることが示された。

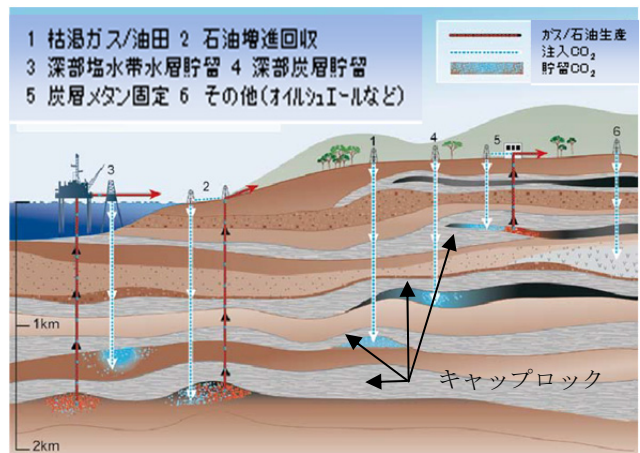


Fig. 1 CO₂地中貯留の概念
The Concept of CCS¹⁾

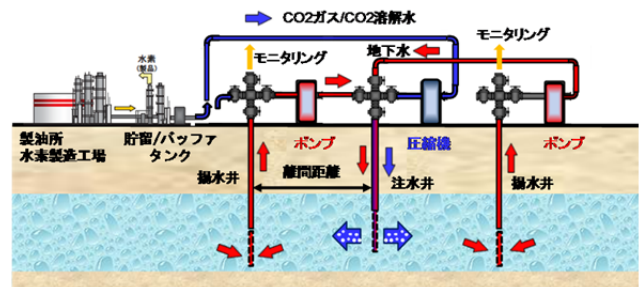


Fig. 2 マイクロバブルCO₂地中貯留の概念²⁾
The Concept of Micro-Bubble CO₂ Storage

3. わが国における貯留可能地域

CMSの貯留対象となる高い孔隙率を有する堆積岩である新第三系鮮新統～第四系下部更新統の分布と排出源との重ね合わせにより、わが国における貯留層の存在を検討した。対象となる地質は、主に日本の平野部から沿岸域に分布しており、CO₂の排出源とも位置的に合致している。Fig.5に示す排出源近傍（特に石油精製などの高純度CO₂を排出するものを対象とした）の堆積盆について検討した結果、有望な地区として、苫小牧、室蘭、庄内平野（能代、秋田、酒田）、沖縄など、都市近郊では房総半島、掛川地区、伊勢湾、大阪湾が挙げられ、国内に広く分布していることがわかる。

4. 貯留可能量の評価

抽出された貯留可能地域において、その貯留能力はどの程度であるか、おおよその貯留可能量を次式で算出した。

$$\text{貯留可能量} = R_c \times A \times h \times \phi \times \text{CO}_2 \text{濃度} \quad (4)$$

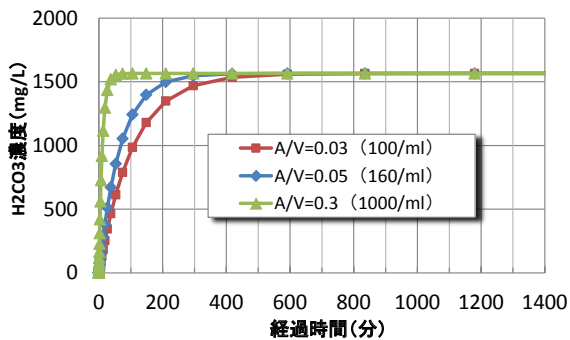


Fig. 3 溶解速度の理論計算結果
Theoretical results of dissolution rates depending on the density of bubbles

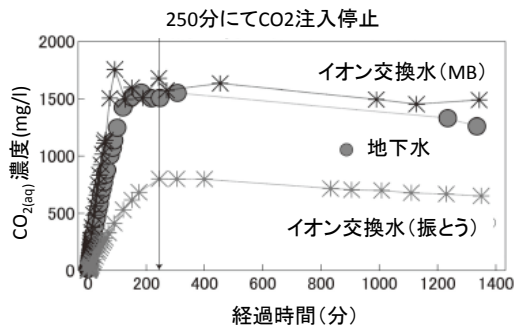


Fig. 4 既往のマイクロバブル溶解実験結果（大気圧）
Experimental results of dissolution of CO₂ under atmospheric pressure⁵⁾

ここで、R_cは地質調査の精度および、地質の不均質性などによる不確実性を考慮した低減率、Aは貯留面積、hは有効層厚（砂岩泥岩で構成される場合には、全層厚に貯留対象である砂岩層の層厚割合を掛けたもの）、φは孔隙率である。領域調査段階では、広域の粗い調査精度とデータの寡少により、低減率は不確実性の高い0.25を用い、調査が進み、精度が上がった段階では1.0を用いる。CO₂濃度については、貯留対象の帯水層に最大限溶解させて貯留できるものとして、CO₂の貯留深度における飽和溶解度を用いた。これらのうち2か所のデータを集め貯留可能量を算定した。結果を表1に示す。A地域では、1.52億t-CO₂、B地域では、240万t-CO₂が見込まれる。これら貯留層に注水井1本と揚水井4本の1ユニットで注入レート1万t-CO₂/年と注水井2本と揚水井6本（2本は2ユニットを兼ねる）の合計注入レート2万t-CO₂/年で注入した場合のコスト評価を行った。

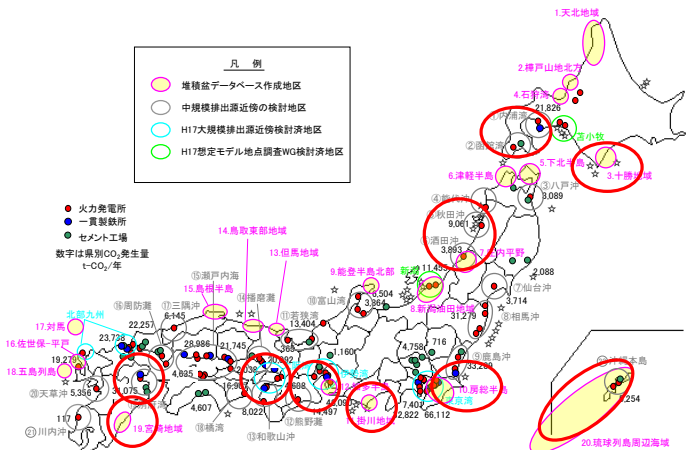


Fig. 5 検討対象堆積盆の位置（赤丸）²⁾

Location of Basins in Japan

Table 1 対象貯留域の貯留可能量
Storage capacity of candidate Basins

	R _c 低減率	A 貯留面積 km ²	層厚 m	砂泥比	h 有効層厚 m	φ 孔隙率	全容積 万m ³	CO ₂ 濃度 %	貯留 可能量 万t-CO ₂
A地域	0.25	450	200	0.5	100	0.3	337,500	5	15,200
B地域	0.25	4	100	1	100	0.3	6,000	4	240

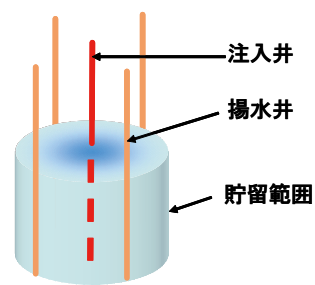


Fig. 6 貯留ユニットの説明図
The Concept of Storage Unit

4.1 注入井・揚水井併用方式による貯留

CO₂マイクロバブル地中貯留は、Fig.6に示すように、揚水井で囲まれる円筒領域の中心の注入井からCO₂マイクロバブルを圧入して溶解水を貯留層に貯留する方法である。この方法によれば地下水より密度の高いCO₂溶解水は貯留層中に遮蔽層なく貯留することが可能である。また、揚水井により汲み上げられた地下水の成分を監視することでモニタリングと制御も実施できるものである。

4.2 実貯留量の評価

貯留可能量の評価によりサイト選定が実施された後、注入レートと貯留層の特性から実際に貯留可能な実貯留量を推定する。その流れをFig.7に示した。広域調査で貯留可能量が推定された後、詳細なサイト条件の調査から貯留層深度での地質構造、孔隙率や透水係数などを明確にし、一方で注入条件である注入レートで注入が可能な概略評価を実施する。例えば、注入レート1万t-CO₂/年として、注水井と揚水井の離間距離をパラメータとして実行可能性についてまず井戸理論で検討した。地域特性は地温や地下水成分に現われるため対象深度でのCO₂飽和濃度も異なる。既存のデータから化学計算ソフトPHREEQを用いて飽和CO₂濃度を求めるとFig.8のようである。これよりA地域では深度300mに4.5%濃度で、B地域では深度400mに4%濃度で注入されることになり、その濃度となるCO₂および溶媒となる地下水の量が計算される。この量により無理なく、揚水、注水システムが成立するかを検討すればよい。注入井1本揚水井4本の1貯留ユニットに、4%濃度で溶解させたCO₂は、注入井一揚水井の離間距離が200mの場合で15万t-CO₂、300mで34万t-CO₂貯留可能である。

4.3 CO₂溶解水の地中挙動

CO₂溶解水の挙動をモデル岩盤において計算した。計算には、多相流体挙動シミュレータTough2⁶⁾およびEOSモジュールとして、塩水およびCO₂の物性を実装しているECO2Nを使用した。Fig.9が計算に用いたモデル地盤である。深度400mから500mにおいて注水井から溶解水を25万t/年のレート(CO₂レートで1万t-CO₂/年)で注入し、4本の揚水井により同量の地下水を揚水する。計算結果の一例をFig.10に示す。計算結果は、6年後、すなわちCO₂を6万t注入した状況を示している。貯槽上部のキャップロックとなっている泥岩層には達しておらず、砂層内に広がっている様子がわかる。集中型の貯留では、比重の小さな超臨界状態のCO₂を圧入するためキャップロック側に広がることになるが、この解析では、広域地下水流動がない場合、CO₂溶解水が安定的に貯留されることが示唆された。

5. 貯留コスト

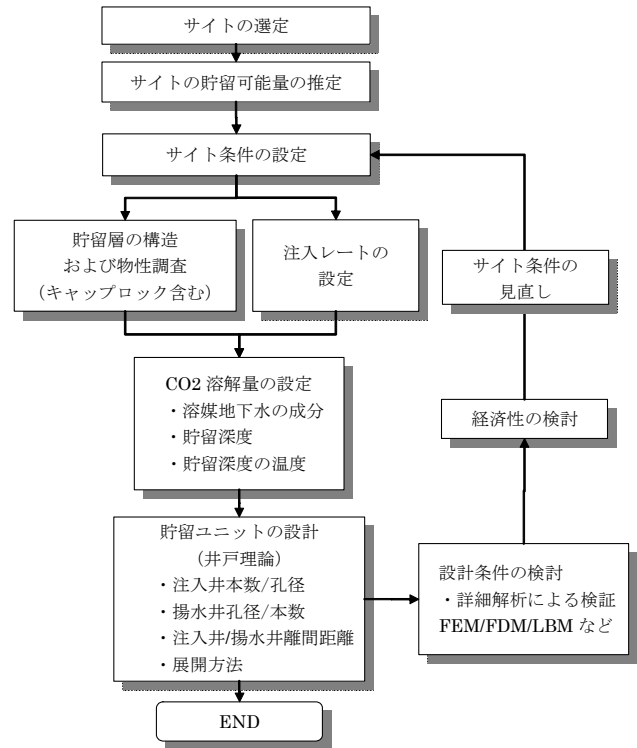


Fig. 7 貯留量評価の流れ
Flow of Estimation of Storage Capacity

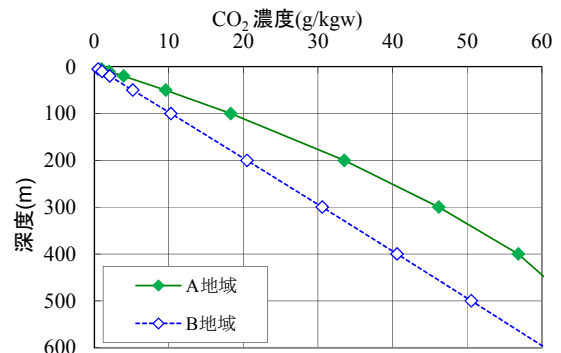


Fig. 8 モデル地域における深度と溶解量の関係
Dissolution of CO₂ vs. Injection depth

CMSシステムのコストは、深さ500mの井戸の削孔コストが主なものとなり、輸送コストは排出源からのパイプラインコストとなる（気体輸送でレートは年間1万t-CO₂/年）。15年で設備費を償却し、維持管理費を3%とすると、注入レート1万t-CO₂/年と2万t-CO₂/年でそれぞれ6,100と4,600円/t-CO₂と試算された。ただし、分離・回収コストは含んでいない。スケールメリットがあるため、注入レート1t-CO₂/年当たりの設備費用に関しては、IPCCのレポート⁷⁾における大規模CCSのコスト（1,400~7,735円/t-CO₂）の方が安価となるが、輸送コストを考慮するとCMSは同等以上となる。

6. 法規制および社会的受容性

6.1 国内法規制

CO₂溶解水はpH4程度の酸性となる（Fig.11参照）ことから環境影響に関する規制をクリアし社会的受容（PA）を確立することが事業の推進には重要となる。

国内においてCCSを実行しようとした場合に、事前調査、貯留サイトの選定からCO₂の貯留中、注入孔の閉鎖とその後の監視期間の段階ごとに様々な関連する規制がある。段階ごとにTable 2に示す。現在苫小牧で実施されようとしている実証試験に関しては、海底下貯留であるため海洋汚染防止法が適用される。CMSでは、輸送コストを抑えるために排出源の直下または近傍の浅部に貯留することから事前の環境影響評価はもちろん、注入中には地下水の水質規制に関連する法規が対象となる。現行の法規制では、CO₂に関して特記している法規はないが、CMSを実施していくに当たり、酸性水による生態系への影響および地層からの溶出成分について検討していく必要がある。

6.2 国外法規制^{8), 9), 10)}

諸外国では、既にEORを対象にするなどのCO₂の地中貯留の商用化が一部実用化されている。事業者には事故時や長期モニタリングの経費確保を規定していることが特徴であり、事業者から管轄当局への責任移管は、一定期間の安全性が確認された後となる。一定期間とは、EU加盟国は最低20年、オーストラリアは15年となっている。

地下水の水質に関しては、飲料水基準などの法規制を受けるため、地下水利用域を避けること、十分なモニタリングを実施する必要も指摘される。したがって、貯留サイトの選定に当たっては、地質構造的安定性だけでなく、地層の化学的安定性をも考慮する必要がある。また、安定的な貯留には貯留中およびその後の水質の監視が重要となり、揚水井がCMSにおける観測孔の役割を担うことが可能になると考える。

7. まとめと今後の課題

マイクロバブルによる溶解速度、わが国の有望な貯留層の存在、それらの貯留層の貯留可能量評価、CO₂溶解水の挙動予測、規制への対処、経済性などの項目からCMSの成立性を検討した結果、次のような結論を得、成立の可能性が示された。

- 1) 日本国内において、CMSの有望地域は多くの沿岸域に存在し、十分な貯留量が確保できること。そのうち2つのモデルサイトの300m～500m深度での貯留可能量は、240万t-CO₂と1.5億t-CO₂であった。
- 2) マイクロバブル化したCO₂は、溶解速度が速いことを理論的に示し、既往実験結果と比較した。
- 3) 注入井1本揚水井4本の1貯留ユニットに、4%

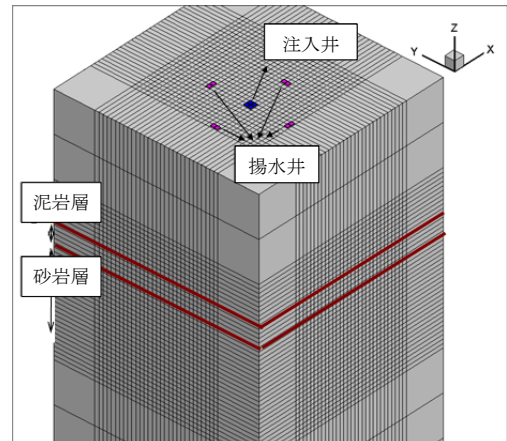


Fig. 9 解析モデル
Analytical Model of CMS

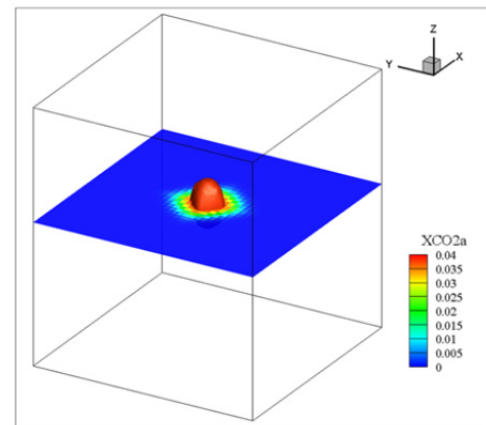


Fig. 10 CO₂濃度分布
Distribution of CO₂ Concentration

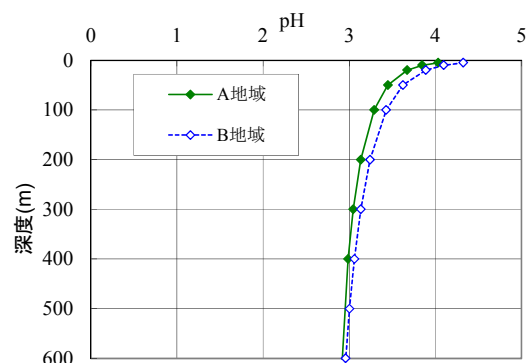


Fig. 11 モデル地域における深度とpHの関係
pH vs. Injection depth

濃度で溶解させたCO₂は、注入井—揚水井の離間距離が200mの場合で15万t-CO₂、300mで34万t-CO₂貯留可能である。

- 4) 注入井/揚水井を用いたシステムでは、揚水井においてモニタリングを実施し、かつ制御も可能なシ

ステムである。

- 5) CO₂溶解水は地下水よりも極僅かに密度が大きいため、地下水流動に従ってほぼ下方に移動することが解析的に示された。
- 6) コスト試算では、CMSシステムのコストは、4,600～6,100円/t-CO₂と試算された。スケールメリットがあるため、設備費用に関しては、大規模CCSの方が安価となるが、輸送コストを考慮するとCMSは同等以上と考えられる。

今後の課題としては、以下のような点が指摘される。

- 1) 圧力下でのマイクロバブルによる溶解量、溶解速度の実験的検証が必要である。
- 2) 原位置でのマイクロバブル作成法を検討し、効率的な溶解を可能にする装置を開発する必要がある。
- 3) CO₂溶解水の長期挙動として、広域な地下水流動により移動し、拡散する。注入事業者はCO₂の漏洩に対して地下水の水質モニタリングを連続的に実施し、それに基づいた注入・揚水の管理をする必要がある。カナダの例では、環境NGOが住民、政府、産業界と共同して調査を実施している。
- 4) 深度-300mで飽和状態にあるCO₂溶解水はpH 4程度の酸性である。そのため、周辺岩石からの有害金属や硫酸塩、塩化物の溶出の可能性がある。貯留サイトの岩盤における溶出可能元素の特定とその溶出速度について事前に検討、把握することが対策となる。また地下水水質のモニタリング項目に飲料水基準を適用することも対策となる。

今後、水素精製工場などの純度の高いCO₂排出源の他、発電事業における発電分離と分散型電源において再生可能エネルギー源だけには頼れず、化石燃料による発電は必要である。その中で温室効果ガスの削減のためには、分散型発電所から排出される一部のCO₂でも近傍の地層に貯留することも考えられる。そのため、排出CO₂も地産地消を考え、様々な方法について検討を進めていく必要がある。

謝辞

本研究の一部は、(財)JKAによる競輪の補助金を受けて一般財団法人エンジニアリング協会で実施した。

参考文献

- 1) IPCC: Special Report on Carbon dioxide Capture and Storage, p199, (2005)
- 2) (財)エンジニアリング協会 地下開発利用研究センター:平成23年度 CO₂マイクロバブル地中貯留の成立性に関する調査報告書, p9, (2011)
- 3) 薛 自求, 山田 達也, 松岡 俊文, 亀山 寛達, 西尾

Table 2 CCSの各段階における規制法規
Relevant regulation for environmental protection
on each stage of CCS in Japan

CCSの各段階	規制法規
事前調査	海防法 第18条の9第1項第1号
サイト選定	鉱業法 第11条・第18条
サイト許可	海防法 特定二酸化炭素ガスの海底下廃棄の許可等に関する省令第1条第2項第1号, 第4条 環境省 告示第2
	鉱山保安法(省令) 鉱山保安法施行規則, 鉱業上使用する工作物等の技術基準を定める省令 鉱業法, 鉱山保安法, 石油及び可燃性天然ガス資源開発法
	海防法施行令第11条の4, 5, 6, 海防法第18条7第2号, 第18条の15, 8 工業用水法, 地盤沈下防止等対策要綱 等 都道府県の地下水に関する条令・要綱(地盤沈下, 塩類化防止, 水質保全等)
注入中	大気汚染防止法, 水質汚濁防止法, 土壌汚染対策法 海防法(省令第1条第3項, 省令第8条, 省令第1条第2項第7号)
	石油及び可燃性ガス資源開発法 第35条第1項, 鉱山保安法 第13条
閉鎖	石油及び可燃性ガス資源開発法 第35条第1項, 鉱山保安法 第13条
閉鎖後	環境省 告示第2

晋:マイクロバブルCO₂による溶解型地中貯留について、資源・素材2009(札幌), pp. 143~150, (2009)

- 4) 青木卓也, 五十嵐敏文, 飯尾佳浩, 西尾英明: 大気中二酸化炭素の溶解によるアルカリ性トンネル排水のpH低減, 応用地質, 第51巻, 第5号, pp. 220-228, (2010)
- 5) 宮澤大輔, 井岡聖一郎, 木山保, 高橋正好, 石島洋二: CO₂MB注入法に関する基礎的研究 - CO₂MB注入法によるCO₂溶解の特徴 -, Journal of MMIJ Vol.127 pp. 189~193, (2011)
- 6) Pruess, K. and Garcia, J: Multiphase flow dynamics during CO₂ disposal into saline aquifers, Environmental Geology, 42, pp. 282-295, (2002)
- 7) IPCC: Special Report on Carbon dioxide Capture and Storage, pp. 259-263, (2005)
- 8) IEA: CARBON CAPTURE AND STORAGE Model Regulatory Framework, 124p, (2010)
- 9) 環境省 市場メカニズム室: 2013年以降に向けたEU域内排出量取引制度(EU-ETS)の改正指令の概要, 4p, (2009)
- 10) 環境省 中央環境審議会 地球環境部会 二酸化炭素海底地層貯留に関する専門委員会: 第4回資料-6 諸外国の関連制度について, 4p, (2006)