

# 褐炭層における CGS 及び ECBMR の適用可能性の検証

2012 年 2 月 47-106664 環境システム学専攻 久留見早矢斗

担当教官 島田 荘平准教授 キーワード：褐炭、夾炭層、CO<sub>2</sub> 地中貯留、ECBMR

## 1. 緒言

CO<sub>2</sub> の削減を目的とした技術として、コールベッドメタン増進回収法(Enhanced CoalBed Methane Recovery, ECBMR)を含めた、CO<sub>2</sub> の地中貯留(Carbon Geological Storage, CGS)が近年注目を浴びており、そのメカニズムの解明や経済性・安全性についてのシミュレーションが行われている[1]。主な貯留サイトとしては深部帯水層、油ガス鉱床、石炭層などで、現在世界で研究や実証実験などが行われている[2]。

瀝青炭層において夕張地区等で実証実験が行われているが、褐炭を対象とした CGS 及び ECBMR の適用可能性については未だほとんど議論されていない。褐炭は世界の石炭埋蔵量の約半分を占めると言われているが、褐炭における CO<sub>2</sub> 貯留、もしくは CH<sub>4</sub> 回収の可能性が示唆できれば、世界の CO<sub>2</sub> 削減及び資源の有効利用に大きく寄与するはずである。

本研究室では夾炭層を対象とした CO<sub>2</sub> 地中貯留シミュレーター、ECOMERS(CBF)-UT が開発されている。本研究では北海道天北炭田褐炭夾炭層をモデルとして、試料の吸着実験からシミュレーションまでを一貫して行い、褐炭層における CGS 及び ECBMR の適用可能性を検証することを目的とする。

## 2. 天北炭田の概要

天北炭田は北海道の北部に位置し、稚内市、浜頓別町、中頓別町、豊富町及び猿払村に広がる南北 60km、東西 25km の広域な区域である。Fig.1 に天北炭田の範囲及び炭鉱の位置を示す。

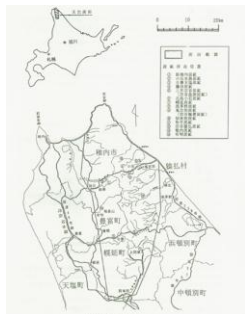


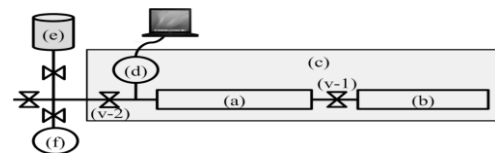
Fig.1 天北炭の囲及び炭鉱位置[3]

天北炭田の埋蔵炭量は約 10 億トンと見積もられており、これは日本全体の埋蔵炭量の約 5%程度を占める。天北炭の石炭はほぼすべてが褐炭であることが特徴で、日本の褐炭埋蔵量の 90%以上が天北炭田に賦存している。

特に宗谷層と呼ばれる厚さ 200~400m 程度の地層が本炭田の主要夾炭層で、本研究ではこの宗谷層中の炭層をシミュレーション対象としている。

## 3. 吸着実験

### 3.1 実験装置



(a)参照セル(b)試料セル(c)恒温槽(d)圧力計  
(e)ガスボンベ(He,CO<sub>2</sub>,CH<sub>4</sub>)(f)真空ポンプ

Fig.2 実験装置の概要図

本実験では定容法により吸着量を測定した。吸着量算出理論については次節にて説明する。なお、装置自体へガス吸着することによる誤差を予め算出しておく必要がある(Blank 測定)。

### 3.2 吸着量算出理論

参照セルにガスを注入した際及び V-1 バルブを開放した際の系内ガスのモル量はそれぞれ次式となる。

$$n_i = \frac{P_i V_R}{RTZ_i} \quad \text{Eq.1}$$

$$n_f = \frac{P_f (V_R + V_S)}{RTZ_f} \quad \text{Eq.2}$$

n:セル内のガスモル量 P:圧力 V<sub>R</sub>:参照セル容積  
V<sub>S</sub>:試料セル容積 R:気体定数 T:温度 Z:圧縮率因子

よってバルブの開放前と解放後のガスのモル量の減少分が吸着量 y となる。

$$y = n_i - n_f = \frac{P_i V_R}{RTZ_i} - \frac{P_f (V_R + V_V)}{RTZ_f} \quad \text{Eq.3}$$

### 3.3 試料

本実験で用いた試料及びその実験条件を以下に示す。天北炭(褐炭)及び天北泥岩は天北炭田において採取されたものである。また褐炭の吸着量の比較のために、瀝青炭である中国炭も吸着実験を行った。

Table 1 試料及び実験条件

	粒径 (mm)	注入ガス	温度(K)
天北炭	0.25~0.50	CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>	308
天北泥岩	0.25~0.50	CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>	308
中国炭	0.25~0.50	CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>	308

### 3.4 吸着実験結果

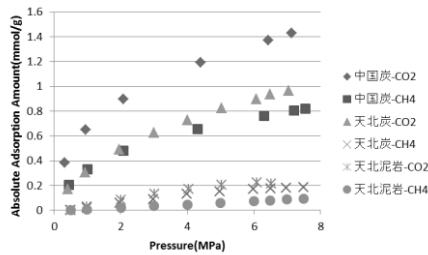


Fig.3 吸着実験結果

一般に物理吸着においてはCO<sub>2</sub>のほうがCH<sub>4</sub>よりも吸着量が多いとされるが、石炭及び泥岩両方の測定結果からもその結果が見てとれる。また測定結果から、褐炭である天北炭は瀝青炭である中国炭よりもCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>ともに吸着量が少ないことがわかる。天北炭が中国炭よりもガス吸着量が少ない理由としては細孔の発達具合の違いなどによるものと思われる。今回は細孔径測定などを行っていないが、一般にCO<sub>2</sub>はCH<sub>4</sub>よりもより小さなポアに進入しやすく、そのポアの多さが吸着量に影響しているのではないかと推測される。

### 3.5 Langmuir Model の適用

ECOMERS(CBF)-UT では、石炭を含む岩石のガス吸着はLangmuir Model(Eq.4 参照)をとるように設計されている。シミュレーションに必要なLangmuir 圧力 K と飽和吸着量 Q<sub>max</sub> を得るため、実験結果にLangmuir Model の適用を試みた。な

お K と Q<sub>max</sub> を得るには Eq.4 を変形し P/Q を P に対してプロットし、傾き及び切片が正である近似直線を得る必要がある(Eq.5)。

$$Q = \frac{Q_{\max} KP}{1 + KP} \quad \text{Eq.4}$$

$$\text{切片} = \frac{1}{K \times Q_{\max}} \quad \text{傾き} = \frac{1}{Q_{\max}} \quad \text{Eq.5}$$

Q:吸着量 P:圧力 Q<sub>max</sub>:飽和吸着量 K:ラングミュア係数

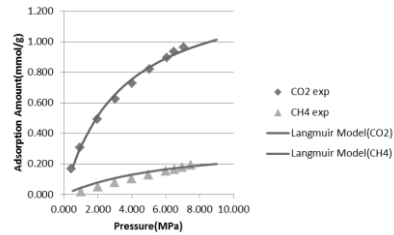


Fig.4 Langmuir Model の適用(天北石炭)

天北石炭のCH<sub>4</sub>と天北泥岩のCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>ではガス吸着がLangmuir Modelをとらなかった、しかしながら本シミュレーターはガス吸着がLangmuir型をとることを想定しているため、吸着を考慮する場合パラメーターが必要となる。よって天北泥岩に関しては、実験結果に極力近くなるようなLangmuir 係数と飽和吸着量を推定して求め、シミュレーションに利用した。各試料・各ガスにおける K と Q<sub>max</sub> の値を Table 2 に示す。

Table 2 各試料における K と Q<sub>max</sub>

		K[1/MPa]	Q <sub>max</sub> [m <sup>3</sup> /kg]
天北石炭	CO <sub>2</sub>	0.30	1.39
	CH <sub>4</sub>	0.15	0.35
天北泥岩	CO <sub>2</sub>	0.20	0.40
	CH <sub>4</sub>	0.10	0.20
中国石炭	CO <sub>2</sub>	0.67	2.11
	CH <sub>4</sub>	0.46	1.04

## 4 シミュレーション

### 4.1 シミュレーターについて

本研究で使用したシミュレーター、ECOMERS(CBF)-UT は夾炭層を対象としたCO<sub>2</sub> 地中貯留シミュレーターで、各種流体の状態変化や

流動に伴う温度変化を考慮した計算が可能となっている[4][5]

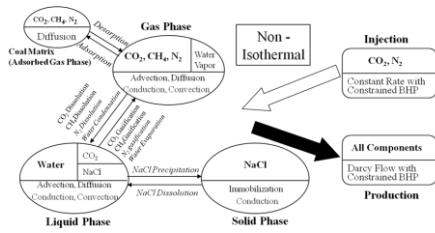


Fig.5 シミュレーションの概要

## 4.2 レザバーモデル

シミュレーションで用いたモデル、各層の孔隙率・浸透率、及び初期条件を Fig.5 及び Table 3~4 に示す。

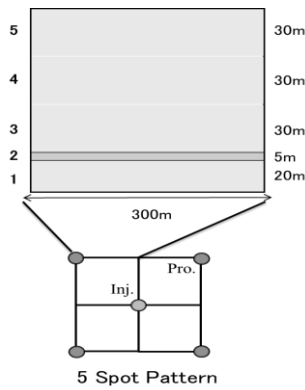


Fig.6 シミュレーションモデル

Table 3 石炭及び泥岩の孔隙率・浸透率

	Porosity	Perm.[md]
Mudstone(1,3,4,5)	0.07	0.1/0.01
Coal(2)	0.03	3.5/1.0

Table 4 計算条件

注入開始	1	Year
生産終了	50	Year
初期温度	35	°C
深度(最上部)	1000	m
初期CH <sub>4</sub> 溶解量	0.01	%
CO <sub>2</sub> 注入速度	2000	m <sup>3</sup> /day

なおシミュレーションモデルに関しては、天北炭

田の実際の地層[3]を元に作成したものである。今回は計算結果をわかりやすいものとするために石炭・泥岩の2層モデルという簡略化したモデルを使用した。計算はガスの挙動や状態変化、最適な注入条件を比較するため、注入井や生産井の位置を変化させる等、様々なパターンを行った。また瀝青炭層のケースとの比較のために、石炭層のパラメータを中国炭の実験結果に設定したケースも計算を行った。

## 4.3 シミュレーション結果

ここでは、注入井・生産井を共に2層(石炭層)に設定した際の、天北炭(褐炭)と中国炭(瀝青炭)の結果の違いを比較する。なお、総CO<sub>2</sub>注入量は両者等しい。また計算終了時点でCO<sub>2</sub>ブレイクスルーは見受けられなかった。

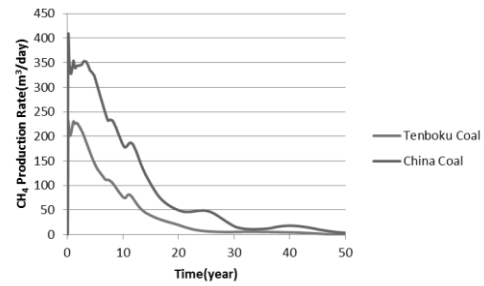


Fig.7 CH<sub>4</sub>生産速度変化

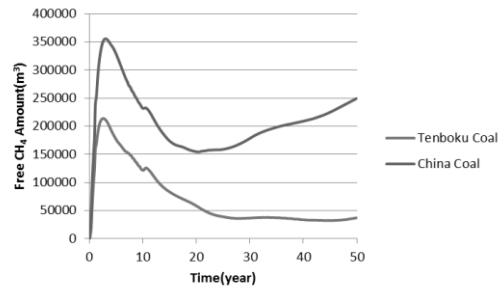


Fig.8 フリーCH<sub>4</sub>量変化

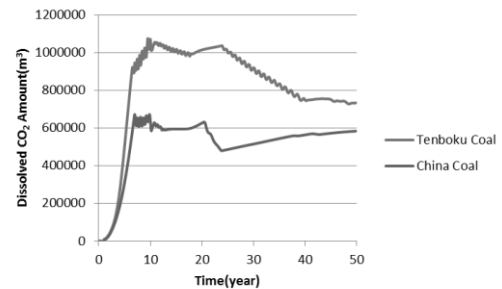


Fig.9 溶解CO<sub>2</sub>量

## ・考察

Fig.7 から、褐炭層の場合瀝青炭層と比較して生産できる  $\text{CH}_4$  量は減少するが、その分脱着してフリーガスとなる  $\text{CH}_4$  量も減少する。Fig.10 は計算終了時点での  $\text{CH}_4$  のモル分率を示している。瀝青炭層の場合、元々の含有  $\text{CH}_4$  が多いため、褐炭と比較して上部に移動する  $\text{CH}_4$  も多くなっている。 $\text{CH}_4$  はその温室効果が  $\text{CO}_2$  の 21 倍とも言われており、そのガス挙動は  $\text{CO}_2$  以上に注意を要する。

Fig.9 から、吸着固定できる  $\text{CO}_2$  量は褐炭の場合の方が少ないため、吸着固定されずに溶解する  $\text{CO}_2$  量は褐炭層の方が大きくなる。

田中[5]によると、石炭層がない帯水層に  $\text{CO}_2$  貯留を行う場合と比較して、石炭層が存在することにより  $\text{CO}_2$  の注入量が向上する。これらを踏まえると、褐炭を対象とした ECBMR もしくは CGS を行うことは、瀝青炭層を対象とする場合、もしくは石炭層のない帯水層を対象とする場合と比較してもメリットがないとは言えず、今後  $\text{CO}_2$  貯留サイトの選択肢の一つとして議論されていくべきである。

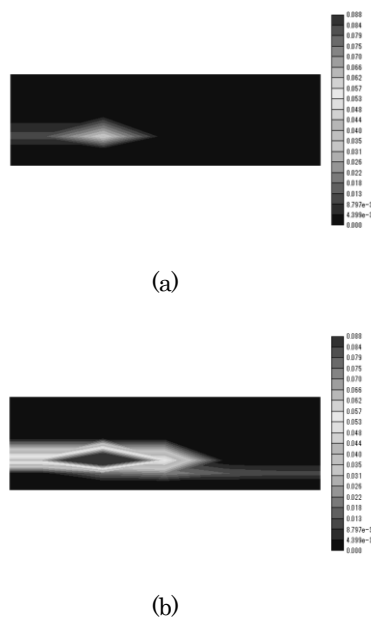


Fig.10 50年後のフリー $\text{CH}_4$ (a)天北炭(b)瀝青炭

## 5 結言

### 5.1 結論

褐炭層における CGS および ECBMR 適用可能性を検証するために、北海道・天北炭田の褐炭夾炭層を対象としてシミュレーションを行った。

吸着実験結果から、褐炭は瀝青炭と比較してガス吸着量が少ないものの吸着能力自体はあること、また泥岩も少量ながらガス吸着があることが示された。

シミュレーション結果から、瀝青炭層を仮定した場合と比較して、生産  $\text{CH}_4$  量は減るものの、遊離して他層に移動する  $\text{CH}_4$  量(回収できず上部に移動する  $\text{CH}_4$  量)も少なくなる。褐炭層は CGS 及び ECBMR サイトとしてのポテンシャルを有する可能性があり、今後は選択肢の一つとしてその是非について議論されるべきである。

### 5.2 課題

今後の課題として以下の様なものが挙げられる。

1. 試料の浸透率、孔隙率などの測定値の反映
2. 経済性の考慮
3. 他の吸着モデル式の適用
4. より詳細なレザバーモデルの構築

特に 1 に関しては、シミュレーション結果に重大な影響を及ぼす可能性のあるパラメーターである。本研究では実測することができなかったが、実際のプロジェクトを想定してシミュレーションを行う際は可能な限り反映する必要がある。

### 参考文献

- [1] IPCC, 4th Assessment Report (AR4), 2007
- [2] RITE, 二酸化炭素固定化・有効利用技術等対策事業二酸化炭素地中貯留技術研究開発成果報告書, 2006
- [3] 北海道通商産業局, 北海道の石炭, 1993
- [4] Z. Chai, and S. Shimada, 2010, Development of non-isothermal multi-phase multi-component numerical simulator for  $\text{CO}_2$  sequestration into deep coal-bearing formation, 資源・素材学会春季大会 2010
- [5] 田中啓, 夾炭層を対象とした  $\text{CO}_2$  地下貯留シミュレーターの開発, 東京大学大学院新領域創成科学研究科環境システム学専攻修士論文, 2011