

博士論文

海底下貯留 CO₂ の漏出を想定した
固気液三相流動に関する数値的研究

(Numerical Study on Gas-Liquid-Solid Three-phase Flow
Assuming Seepage of CO₂ Stored under the Seabed)

加野 友紀

論文目次

1. 緒論	1
1.1 地球温暖化対策の世界および我が国の動向.....	1
1.2 海底下 CO ₂ 貯留における漏出影響評価.....	4
1.3 固気液三相流動に関する既往の研究.....	9
1.4 本研究の目的.....	10
【参考文献】	11
2. LBM-DEM 連成による固気液三相流動シミュレータの開発	15
2.1 気液二相流 LBM モデル.....	16
2.2 LBM における移動境界と流体-固体間運動量伝達.....	19
2.3 DEM による固体間相互作用.....	20
2.4 基礎物理モデル検証.....	21
2.4.1 単相一様流中の球にかかる抗力モデル.....	22
2.4.2 単一気泡上昇モデル.....	25
2.4.3 円筒における毛管圧モデル.....	27
2.5 固気液三相流動シミュレーションにおける領域サイズ依存性.....	33
2.5.1 ガスみち・気泡形成挙動の解析方法.....	35
2.5.2 領域サイズ依存性.....	46
【参考文献】	52

3. 未固結層における気泡形成シミュレーション	55
3.1 固結層と未固結層におけるガス侵入と気泡形成挙動の差異.....	55
3.2 未固結層におけるガスみち・気泡形成に係るパラメタスタディ.....	71
3.2.1 層厚の影響.....	72
3.2.2 流量と間隙率の影響.....	76
3.2.3 流量と粒径の影響.....	83
3.3 未固結層における気泡形成メカニズムの考察.....	89
3.3.1 円形オリフィス理論および室内実験との比較.....	89
3.3.2 流量の影響.....	97
3.3.2 流量と間隙率の影響.....	99
3.3.3 流量と粒径の影響.....	100
【参考文献】.....	101
4. 結論	102
謝辞	106

表目次

Table 1-1 Example of observed bubble/droplet size seeping from seafloor sediment.	6
Table 2-1 Physical properties for three-phase simulation.	22
Table 2-2 Combination of surface tension coefficient and contact angle for simulation of capillary pressure.	30
Table 2-3 Physical properties for simulation of capillary pressure.	30
Table 2-4 Physical properties for solid phase.	34
Table 2-5 Simulation parameters for different domain area.	47
Table 3-1 Physical properties for bubble forming simulation.	56
Table 3-2 Parameters for bubble forming simulation.	56
Table 3-3 Properties for parameter study.	71
Table 3-4 Classification of grains of sediment.	83
Table 3-5 Simulation parameters for cases of different grain sizes.	84
Table 3-6 Simulation parameters for bubble forming simulation with grains of 4-mm diameter	87
Table 3-7 Simulation parameters for bubble forming from circular cylinder.	93

目次

Fig. 1-1 Proposed energy mix in 2030 by the Japanese government.	2
Fig. 1-2 Conceptual diagram of Carbon dioxide Capture and Storage under the seabed.	3
Fig. 1-3 Conceptual diagram of leakage/seepage in CO ₂ storage under the seabed.	3
Fig. 1-4 Size and shape of bubble.	5
Fig. 1-5 Example of observed bubble size seeping from seabed sediment.	7
Fig. 1-6 Conceptual diagram of three-phase interaction in bubble formation through unconsolidated sediment	8
Fig. 2-1 Conceptual diagram of coupled program of LBM and DEM.	15
Fig. 2-2 Particle velocity distribution of D3Q15 model in LBM.	17
Fig. 2-3 Conceptual diagram of the collision process for velocities of opposite direction.	20
Fig. 2-4 Pressure distribution and vectors of flow velocity in (a) single liquid phase and (b) single gas phase.	23
Fig. 2-5 Simulated drag coefficient and reference value derived from Eq. (2-27) in (a) single liquid phase and (b) single gas phase.	24
Fig. 2-6 Simulated rising velocity of bubble and reference value derived from Eq. (2-28) and Eq. (2-29).	26
Fig. 2-7 Change in shape of rising bubble.	26
Fig. 2-8 Conceptual diagram of contact angle.	27
Fig. 2-9 Conceptual diagram of simulated step-up method.	29
Fig. 2-10 Simulated breakthrough of gas for different combination of $\sigma_{LG} \cdot \cos\theta = 1.73 \times 10^{-2}$ (N/m) and reference value of capillary pressure derived from Sorai <i>et al.</i> ²⁻¹⁶⁾	31
Fig. 2-11 Conceptual diagram of calculation domain.	34
Fig. 2-12 Conceptual diagram of simulation model in (a) 2D and (b) 3D view.	36
Fig. 2-13 Conceptual diagram of computing porosity and channel size.	36
Fig. 2-14 Conceptual diagram of separated bubble for computing bubble diameter.	37
Fig. 2-15 Conceptual diagram of gas channel.	38

Fig. 2-16 Conceptual diagram of gas channel and computing its size.....	39
Fig. 2-17 Example of snapshot series of (right) 3D view and (left) cross-sectional view of gas channel at $z = z_{min}$	42
Fig. 2-18 Example of analysis of bubble forming simulation. (a) Simulated channel equivalent diameter vs. flow rate per area and (b) simulated bubble equivalent diameter vs. channel equivalent diameter.....	45
Fig. 2-19 Simulated channel equivalent diameter for different domain area. Flow per area Q_a is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	48
Fig. 2-20 Cross-sectional view of gas channel at $z = z_{min}$ for different domain area. $L_D =$ (a) $7.5d_p$, (b) $10 d_p$, (c) $12.5d_p$, (d) $15d_p$. Flow per area Q_a is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	49
Fig. 2-21 Simulated channel equivalent diameter for different domain area. Flow per area Q_a is $2.23 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	50
Fig. 2-22 Cross-sectional view of gas channel at $z = z_{min}$ for different domain area. $L_D =$ (a) $7.5d_p$, (b) $10 d_p$, (c) $12.5d_p$, (d) $15d_p$. Flow per area Q_a is $2.23 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	51
Fig. 3-1 Initial package of sand grains. Grain diameter is 2.0 mm and porosity is (a) 0.35 and (b) 0.43.....	57
Fig. 3-2 Cross-sectional snapshots of gas phase intrusion into unconsolidated layer, started from Fig.3-1(a).....	59
Fig. 3-3 Cross-sectional snapshots of gas phase intrusion into unconsolidated layer, started from Fig.3-1(b).	60
Fig. 3-4 Three-dimensional snapshots of gas phase intrusion and formation of bubble through unconsolidated layer of which porosity is 0.35, (a) at forming gas channel and (b) during formation of bubbles.....	61
Fig. 3-5 Three-dimensional snapshots of gas phase intrusion and formation of bubble through unconsolidated layer of which porosity is 0.43, (a) at forming gas channel and (b) during formation of bubbles.....	62
Fig. 3-6 x-y plane snapshots of gas phase intrusion and formation of gas channel in unconsolidated layer of which porosity is 0.35, (a) at initial condition and (b) after gas intrusion.....	63

Fig. 3-7 x-y plane snapshots of gas phase intrusion and formation of gas channel in unconsolidated layer of which porosity is 0.43, (a) at initial condition and (b) after gas intrusion.....	64
Fig. 3-8 x-y plane snapshots of pressure in unconsolidated layer of which porosity is 0.35. (a) shows the tip of gas phase and (b) shows a x-y plane lying directly on the plane of (a)..	65
Fig. 3-9 Two different cross-sectional snapshots of gas phase intrusion through consolidated layer, (a) is the same cross-sectional plane in Fig.3-1(a), and (b) is another plane where gas intrudes furthest.....	66
Fig. 3-10 Two different timing of cross-sectional snapshots of gas phase intrusion through consolidated layer of Fig.3-1(b).	67
Fig. 3-11 Gas passage thorough unconsolidated layer of which porosity is (a) 0.35 and (b) 0.43.	68
Fig. 3-12 Gas passage thorough consolidated layer of which porosity is (a) 0.35 and (b) 0.45.	69
Fig. 3-13 Bubble diameter distribution forming through consolidated layer and unconsolidated layer.....	70
Fig. 3-14 Conceptual diagram of simulation models for different thickness of sand layer.	73
Fig. 3-15 Simulated channel equivalent diameter for different thickness of sand layer.....	74
Fig. 3-16 Cross-sectional view of gas channels at $z = z_{smin}$ for different thickness of sand layer.	75
Fig. 3-17 Initial cross-sectional of Y-plane in case where porosity is (a) 0.43 and (b) 0.35.	76
Fig. 3-18 Simulated channel equivalent diameter and vs. flow rate per area for different porosity in cases where the order of flow rate per area is $O(10^{-3}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	78
Fig. 3-19 Simulated channel equivalent diameter vs. flow rate per area for different porosity in cases where the order of flow rate per area is $O(10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	79
Fig. 3-20 Simulated bubble equivalent diameter vs. channel equivalent diameter for different porosity in cases where the order of flow rate per area is (a) $O(10^{-3}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ and (b) $O(10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	81
Fig. 3-21 Flow rate per channel vs. channel (orifice) equivalent diameter.....	82

Fig. 3-22 Simulated channel equivalent diameter vs. flow rate per area for different grain size.	85
Fig. 3-23 Dimensionless channel equivalent diameter ($= d_c/d_p$) vs. flow rate per area for different grain size.....	86
Fig. 3-24 Simulated bubble equivalent diameter vs. channel equivalent diameter for different grain size.	86
Fig. 3-25 (a) Cross-sectional and (b) three-dimensional snapshot in case where grain diameter is 4.0 mm.....	88
Fig. 3-26 Transition flow rate vs. channel (orifice) diameter in circular orifice theory and present simulation data.....	90
Fig. 3-27 Bubble equivalent diameter vs. channel equivalent (orifice) diameter in circular orifice theory defined by Eq.(2-35), present simulation data and its correlated function.	90
Fig. 3-28 Cross-sectional diagram of gas channel in present simulation with different flow rate. In these cases, grain diameter is 2.0 mm, porosity of layer is 0.43, and flow rate per area is (a) 2.67×10^{-3} , (b) 5.33×10^{-3} , and (c) $8.00 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$	91
Fig. 3-29 (a) Bubble equivalent diameter vs. orifice diameter in circular orifice theory (solid line) defined by Eq.(2-35) and simulation data for circular orifice (black circular symbols). (b) Snapshot of bubble forming from circular orifice of 4-mm diameter...	94
Fig. 3-30 Bubble diameter vs. flow rate per channel in present simulation data and results of sand (1.18 - 2.00 m) case in kawada's experiment ³⁻³	95
Fig. 3-31 x-y plane snapshots of pressure difference at the tip of gas phase in unconsolidated layer of which porosity is 0.35 and diameter of particle is 2.0 mm in the case where flow rate per area is (a) 2.67×10^{-3} and (b) $2.32 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$	98
Fig. 3-32 Bubble diameter forming at orifices of different diameters d_c vs. flow rate per channel, following Eq. (2-35) and properties in Table 3-1.	99

1. 緒論

1.1 地球温暖化対策の世界および我が国の動向

2015年7月に我が国の経済産業省は長期エネルギー需給見通し¹⁻¹⁾を発表し、その中で2030年度における電源構成案を提案した(Fig.1-1)。それによれば原発依存度を東日本大震災前の約3割から20 - 22%程度へと低減するとしている一方で、温室効果ガス(Greenhouse Gas、GHG)を多く排出する石炭・石油・天然ガス等の火力発電については依然5割を超える割合となっている。

同年12月12日にフランス・パリで開催された国連気候変動枠組条約(UNFCCC)第21回締約国会議(COP21)において、2020年以降の温暖化問題に対する国際協調的取り組みの仕組みを示したパリ協定¹⁻²⁾が採択された。パリ協定は長期目標として産業革命以前からの温度上昇を2°C未満に抑えさらに1.5°C未満を目指すこと、そのために可及的速やかなGHG排出量のピークアウトと21世紀後半における人為起源のGHGを正味0にすることを掲げており、その実現に向け発展途上国を含む196ヶ国全ての締約国は5年毎に削減計画(約束草案)の更新と提出を行い、その際に前期よりも進展した目標を設定することで合意されている¹⁻²⁾。我が国では2015年7月17日に約束草案¹⁻³⁾が定められており、GHGの2030年度に2013年度比26.0%減(2005年度比25.4%減)を掲げている。この達成のために省エネルギー・エネルギーミックスの活用が推進されているが、同時に5割を超える火力発電への依存を踏まえ二酸化炭素回収貯留技術(Carbon dioxide Capture and Storage, CCS)が重要な役割を果たすものと見なされている^{1-4, 5)}。

CCSは工場や発電所等の人為的な大規模排出源において主要なGHGであるCO₂を大気中に放出することなく分離・回収し海中または地中に隔離・貯留する(Fig.1-2)こ

とで大気中の CO₂ 濃度上昇を防ぐ技術である¹⁻³⁾。現在、日本が批准するロンドン条約 1996 年議定書¹⁻⁶⁾において海洋への CO₂ 直接溶解は認められていないため、ここでは地層中へ CO₂ を圧入する地中貯留に限って話を進める。なお、当議定書では海底下貯留層への CO₂ 圧入(海底下 CO₂ 貯留)はリバーズリストへの登録により認められている¹⁻⁶⁾。

CO₂ 地中貯留における主な貯留層には陸域および沿岸海域の油ガス田(枯渇・残留を含む)や塩水帯水層が挙げられる。全球的には沿岸海域の海底下貯留層の貯留キャパシティは全体の約 3 割と推定されているが¹⁻⁷⁾、地域によって偏りがあり特に我が国においては海域に発達する非構造帯水層のキャパシティが全体の約 7 割超に上ると推定されている¹⁻⁸⁾。

CO₂ 地中貯留における安全性評価には、圧入に伴う地盤隆起や誘発地震等の岩盤力学的な影響に加え、圧入した CO₂ の漏出に伴う飲用・工業用地下水の汚染や大気・海中への各環境影響の評価が挙げられる¹⁻⁴⁾。また CO₂ が大気中に回帰する場合は、貯留による温暖化抑制効果が失われる可能性がある。海底下 CO₂ 貯留においては、海洋が漏出 CO₂ の大気中回帰に対するバッファとなると同時に影響評価のエンドポイントとなり得るため、海中へ CO₂ が漏出する際の挙動を予測することがプロジェクトの安全性評価およびモニタリング計画の策定において重要となる (Fig.1-3)。

Proposed energy mix in 2030 by the Japanese government

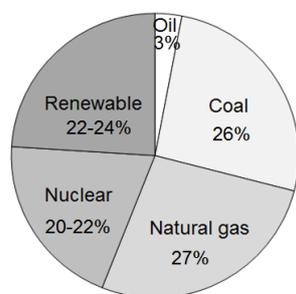


Fig.1-1 Proposed energy mix in 2030 by the Japanese government (produced based on “Long-term Prospect of Supply and Demand of Energy”¹⁻¹⁾). Thermal power generation accounts for more than 50%.

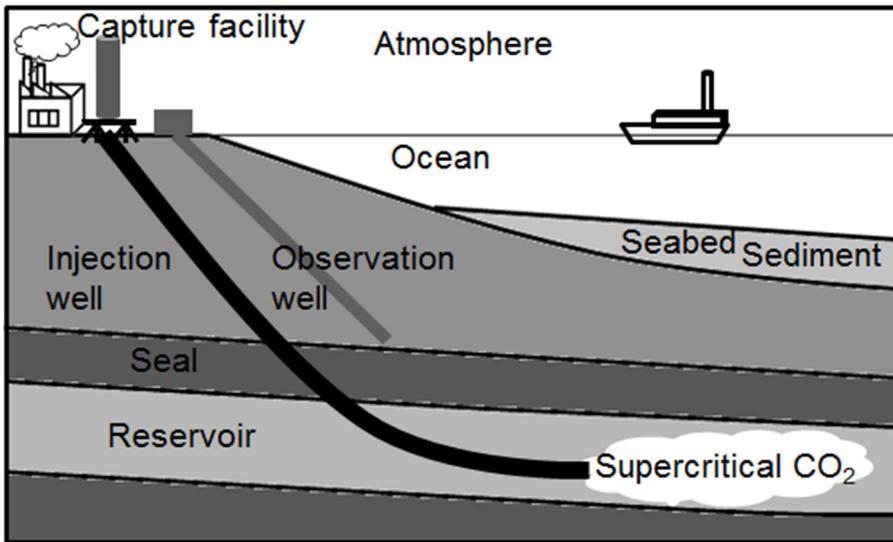


Fig.1-2 Conceptual diagram of Carbon dioxide Capture and Storage under the seabed. CO₂ is captured from emission source, transported, and injected into sub-sea geological formations, often in the supercritical phase subject to temperature and pressure of reservoir.

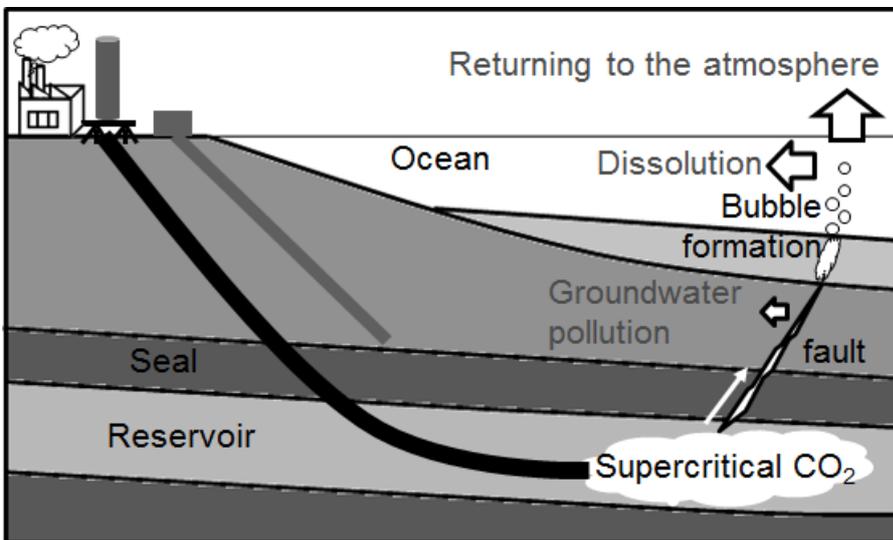


Fig.1-3 Conceptual diagram of leakage/seepage in CO₂ storage under the seabed. Buoyant CO₂ leaks through pathways such as faults dissolving in the groundwater. When it reaches ocean, it forms bubble/droplet through seabed sediment. Some dissolves into seawater during rising sea-water column, and some return to the atmosphere.

1.2 海底下 CO₂貯留における漏出影響評価

経済産業省は「CCS の大規模実証事業を実施する際に安全面・環境面から遵守することが望ましい基準」として「CCS の実証事業の安全な実施にあたって」¹⁻⁹⁾をまとめており、この基準では圧入された CO₂ が貯留層外に移動することを漏洩 (leakage)、飲用地下水への移動や地中から大気・海中への移動を漏出 (seepage) と定義づけている。

海中へ漏出した CO₂ 挙動について、Kano *et al.*¹⁻¹⁰⁾や Dewar *et al.*¹⁻¹¹⁾は海底面から海面までの海中における CO₂ 気泡・液滴の上昇・溶解挙動の数値シミュレーションを行い、ナチュラルアナログやフィールド実験の観測結果と比較し、初期の気泡サイズや漏出レートが大きく影響することを示した。

単一気泡からの溶解レート Γ は物質移動係数 k 、気泡表面積 A 、界面濃度 C_l および海中濃度 C_w を用いて式(1-1)のように表される¹⁻¹⁰⁾。物質移動係数と表面積の積 kA は主にレイノルズ数の関数として与えられるが、Fig.1-4 に示すように気泡はその大きさによって球体・楕円体・冠球等に形状が変化し、速度抵抗やこの関数も変化することが知られている¹⁻¹²⁾。一般に気泡が小さいほど物質移動係数 k は小さくなるが漏出レートが同じであった場合、個々の気泡径が小さいほど漏出 CO₂ 全体の表面積 A' は大きくなる。その結果、CO₂ 単位体積あたりの kA' は通常気泡サイズの領域 (1-60 mm 径) においては大きな楕円体となるほど小さくなり、冠球 (等価球径約 18 mm 以上) の形状に変化する時ギャップを生じて増加した後、更に大きなサイズになるにつれ再び減少していく¹⁻¹⁰⁾。一方、気泡の上昇速度は気泡が小さいほど小さく長期間海中に留まり溶解が進むことになる。このように、CO₂ 漏出における溶解による濃度分布や大気回帰を予測するためには漏出レートだけではなく、気泡サイズを考慮したシミュレーションが必要となる。即ち、海底面から漏出する CO₂ の気泡サイズを推定することが重要となってくるのである。

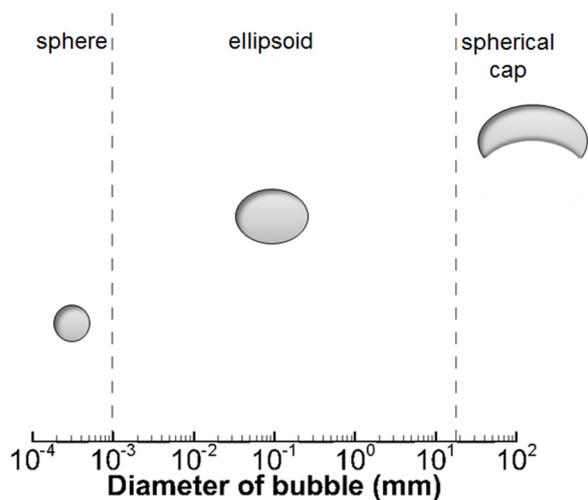


Fig.1-4 Size and shape of bubble.

$$\Gamma = kA(C_l - C_w) \quad (1-1)$$

Table 1-1 は海底火山活動等による CO₂, CH₄ を海底下 CO₂ 貯留における漏出のナチュラルアナログとして、観察された気泡サイズを吹き出し口の水深に対してまとめたものである¹⁻¹³⁻¹⁹。Fig.1-5 にその一部を図示するが、気泡サイズに水深、即ち周囲の水圧との相関は見られない。その他 Table 1-1 に示すように水深約 1500 m で 8-10 mm 径の液滴¹⁻¹⁸や水深約 20 m で 60-80 mm 径（ただし、吹き出し直後に複数の気泡が合体している可能性あり）の気泡¹⁻¹⁹が観察されていることから、水深だけで漏出する気泡サイズを推定することは困難であることが分かる。一般に細管から生じる気泡／液滴サイズは管径と流量・界面張力の力学的バランスで計算される¹⁻²⁰。海底下 CO₂ 貯留において細管の役割を果たすのは堆積層の粒子が構築するスロートである。地中貯留における CO₂ 挙動に関し、地層は一般に固結した堆積岩として多孔質媒体モデルで扱われ（ただし漏洩経路となる廃坑井や断層・亀裂帯等には多く別モデルが適用される）¹⁻²¹、スロート径は多孔質媒体の間隙率や粒径から推定される¹⁻²²。しかし、沿岸域の海底面には未固結

状態の海底堆積物が堆積しており，カッティング検層や PS 波変換法から推定される厚みは数百 m に及ぶこともしばしば見られる¹⁻²³⁻²⁵⁾。

Table 1-1 Examples of observed bubble/droplet size seeping from seafloor sediment. 5th row shows an example of liquefied CO₂ droplet. For 6th row, Italiano *et al.*¹⁻¹⁹⁾ indicates possibility of bubble coalescence at the discharge.

Location	Origin	Content	Water depth (m)	Diameter (mm)
Ardmucknish Bay, Scotland ^{1-13, 14)}	Release experiment	CO ₂ gas	11	2-11 (50% of 6.5-9.0 mm)
Wakamiko, Japan ^{1-15, 16)}	Volcanic	CO ₂ gas (+H ₂ S)	200	16-33
Iron Gate, Danube River, Romania ¹⁻¹⁷⁾	CH ₄ reservoir	CH ₄ gas	20	2-3
Dnepr Paleo Delta area, Black sea ¹⁻¹⁷⁾	CH ₄ reservoir	CH ₄ gas	90	1.3-11.3 (4.1 ave.)
Okinawa Trough, Japan ¹⁻¹⁸⁾	Volcanic	CO ₂ liquid	1424-1520	8-10
Panarea, Italy ¹⁻¹⁹⁾	Volcanic	CO ₂ gas (+CH ₄)	21	60-80

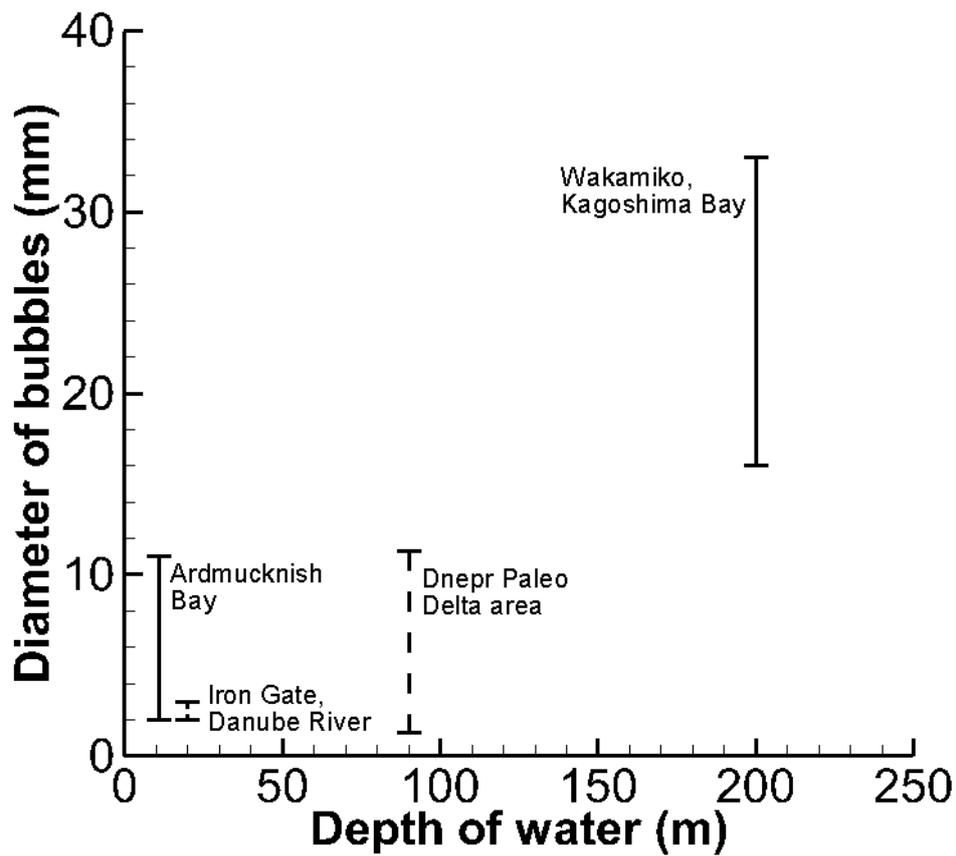


Fig.1-5 Examples of observed bubble sizes seeping from seabed sediment. Patterns of lines indicate main components of gas. Solid line indicates CO₂ and dashed line indicates CH₄. Observed locations are Ardmucknish Bay (Scotland)^{1-13,14}, Iron Gate, Danube River (Romania)¹⁻¹⁷, Dnepr Paleo Delta area (Black Sea)¹⁻¹⁷, and Wakamiko, Kagoshima Bay (Japan)^{1-15,16} in order from shallow depth to deep depth.

未固結層を通じた気泡形成の例としては河田¹⁻²⁶⁾や Li *et al.*¹⁻²⁷⁾や実験が挙げられ、未固結層の粒子サイズやガス流入レートによって生成する気泡のサイズや上昇速度が変化することが示されている。これらの実験ではガスの流入により未固結の砂礫粒子が押しつけられ集中的なガスみちを形成しており、固結多孔質媒体による気泡形成モデルでは同様の粒径・初期間隙率を有する未固結層を通じた気泡形成挙動が再現できないおそれを示唆している。

Blackford *et al.*¹⁻²⁸⁾は実海域の海底下浅部からの CO₂ 放出実験において、浅部堆積物中の CO₂ 移行は従来の多孔質モデルでは再現できない速い流動が起きていること、また CO₂ が海中に漏出する吹き出し口では CO₂ ガスが堆積物粒子を吹き飛ばし小さなくぼみ（ポックマーク）を形成しその底面から気泡が生成していることを示唆した。これは実海域においても漏出ガスが海底堆積物中で粒子配置を変化させガスみちや気泡の吹き出し口を形成し得ることを示している。

これらに示される未固結層へのガス流入によるガスみち・気泡形成挙動を把握するためには、砂礫粒子 - 間隙水 - ガスの固気液三相流動を解明する必要がある (Fig.1-6)。

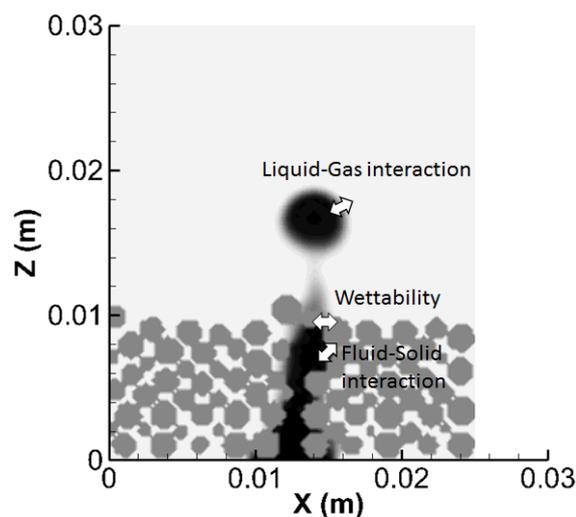


Fig.1-6 Conceptual diagram of three-phase interaction in bubble formation through unconsolidated sediment.

1.3 固気液三相流動に関する既往の研究

未固結層に流入したガスが堆積物粒子を押しのけることによるガスみち形成のメカニズムについては多くの室内実験やシミュレーションが行われている¹⁻²⁹⁻³³⁾。Holtzman *et al.*¹⁻²⁹⁾はこの未固結層におけるガスみち形成を固結した通常の岩石における亀裂開口 (fracturing) と区別して capillary fracturing と呼んでいる。一般の固結した多孔質媒体における二相流動(ここでは低粘性流体(ガス)による高粘性流体(水)の置換を考える)は界面張力と流入圧の関係により viscous fingering と capillary invasion に場合分けされる¹⁻²⁹⁾。viscous fingering は界面における粘性の不安定によりガスが指状のフラクタルな形状で進入していく現象であり、capillary invasion はガスの流入圧がスロートにおける毛管圧を超えて進入していく現象である。この二つは粘性力と界面張力の比であるキャピラリー数 Ca によって指標づけられる¹⁻²⁹⁾。

これらの現象に対し capillary fracturing は毛管圧が固体粒子の摩擦抵抗よりも大きい場合に固体粒子が動き出してガスみちを形成する現象である。通常の fracturing と異なり破壊片は生じず固体粒子の再配置による。Jain & Juanes¹⁻³⁰⁾は離散要素法 (Discrete Element Method, DEM) と二相流の界面張力・流体圧力追跡の連成モデルを構築し、海底下 300m におけるメタンガスの流入を想定した固気液三相流動について二次元円筒モデルを用いたシミュレーションを行った。その結果、固体粒子が小さくなるにつれて毛管圧が摩擦抵抗を上回り capillary invasion から capillary fracturing へガス流動レジームの変化が起こることが示唆されている。

この他ガラスビーズやスラリー層、Hele-Shaw セルを用いた未固結層へのガス注入実験は数多く行われており¹⁻³¹⁻³³⁾、粒径や流量または流入圧によるガス流動レジームの変化が示唆されているが、capillary fracturing が起こった後のガスみち状態の変化やそれに伴う気泡形成につながるメカニズムの解明は十分とはいえない。

1.4 本研究の目的

海底下貯留における CO₂ 漏出では、海底面から放出される気泡のサイズや流量が海中における上昇・溶解挙動の制御因子となる。未固結の海底堆積物を通じた気泡形成には砂礫粒子 - 水 - CO₂ の固気液三相流動が大きく影響を与えると考えられるが、その挙動はまだ十分に解明されているとは言いがたい。

本研究では未固結層中における固気液三相流動を再現し未固結層を通じた気泡形成に与える影響の解明に資するため、砂礫粒子と低粘性流体の三次元固気液三相流動シミュレータを開発することを目的とし、さらに開発したシミュレータを用い、固結・未固結層におけるガス侵入と気泡形成挙動シミュレーションおよび未固結層における気泡形成挙動に係るパラメタスタディを行う。具体的には格子ボルツマン法 (Lattice Boltzmann Method, LBM) と DEM の連成シミュレータを構築し、海底堆積物のごく表面にガス溜まりが形成され、その上に薄い砂礫層が載っているという状況を仮定したガスマチ・気泡形成シミュレーションを実施し、流量・間隙率・粒径等のパラメタが与える影響を調べる。

【参考文献】

- 1-1) 経済産業省, 2015. 長期エネルギー需給見通し.
<http://www.meti.go.jp/press/2015/07/20150716004/20150716004_2.pdf> (accessed June 01, 2016)
- 1-2) United Nations Framework Convention on Climate Change, 2015. Paris Agreement.
<http://unfccc.int/files/home/application/pdf/paris_agreement.pdf> (accessed June 01, 2016)
- 1-3) 地球温暖化対策推進本部, 2015. 日本の約束草案.
http://www.env.go.jp/earth/ondanka/ghg/mat01_indc.pdf (accessed June 01, 2016)
- 1-4) Intergovernmental Panel on Climate Change, 2005. Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage.
<https://www.ipcc.ch/pdf/special-reports/srccs/srccs_wholereport.pdf>
<https://www.ipcc.ch/pdf/special-reports/srccs/srccs_technicalsummary.pdf> (accessed June 01, 2016)
- 1-5) 日本経済再生本部, 2015. 日本再興戦略 2015 改訂.
<https://www.kantei.go.jp/jp/singi/keizaisaisei/pdf/dai2_3jp.pdf> (accessed June 01, 2016)
- 1-6) ロンドン条約 1996 年議定書.
<<http://www.mofa.go.jp/policy/treaty/submit/session166/agree-9.pdf>> (accessed June 01, 2016)
- 1-7) Koelbl, B.S., van den Broek, M., van Ruijven, B., van Vuuren, D.P., Faaij, A.P.C., 2013. A sensitivity analysis of the global deployment of CCS to the cost of storage and storage capacity estimates. *Energy Procedia* 37, 7537-7544.
- 1-8) Research Institute of Innovative Technology for the Earth, 2005. 平成 17 年度 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

- <<http://www.rite.or.jp/English/lab/geological/survey.html>> (accessed June 01, 2016)
- 1-9) 経済産業省二酸化炭素回収・貯留研究会, 2009. CCS 実証事業の安全な実施にあたって. <<http://www.meti.go.jp/report/downloadfiles/g90807a01j.pdf>> (accessed June 01, 2016)
- 1-10) Kano, Y., Sato, T., Kita, J., Hirabayashi, S., Tabeta, S., 2009. Model prediction on the rise of pCO₂ in uniform flows by leakage of CO₂ purposefully stored under the seabed. *Int. J. Greenhouse Gas Control* 3(5), 617-625.
- 1-11) Dewar, M., Wei, W., McNeil, D., Chen, B., 2013. Small-scale modelling of the physiochemical impacts of CO₂ leaked from sub-seabed reservoirs or pipelines within the North Sea and surrounding waters. *Marine Pollution Bulletin* 73(2), 504-515.
- 1-12) Clift, R., Grace, J.R., Weber, M.E. 1978. Bubbles, Drops and Particles. Academic Press. New York.
- 1-13) Sellami, N., Dewar, M., Stahl, H., Chen B., 2015. Dynamics of rising CO₂ bubble plumes in the QICS field experiment Part 1 - The Experiment, *Int. J. Greenhouse Gas Control* 38, 44-51.
- 1-14) Dewar, M., Sellami, N., Chen, B., 2015. Dynamics of rising CO₂ bubble plumes in the QICS field experiment Part 2 - Modelling, *Int. J. Greenhouse Gas Control* 38, 52-63.
- 1-15) Research Institute of Innovative Technology for the Earth, 2008. 平成 19 年度 二酸化炭素固定化・有効利用技術等対策事業 二酸化炭素の海洋隔離に伴う影響評価予測技術開発 成果報告書
<http://www.rite.or.jp/results/result_reports/pdf/2007-kaiyoukakuri-2.pdf> (accessed June 01, 2016)
- 1-16) 下島公紀, 2010. 海底から噴出する気体 CO₂ の拡散挙動観察, Central Research of Institute of Electric Power Industry, Environmental Science Research Laboratory Rep., No.

- V09035. <<http://criepi.denken.or.jp/jp/kenkikaku/report/detail/V09035.html>> (accessed June 01, 2016)
- 1-17) McGinnis, D. F., Greinert, J., Artemov, Y., Beaubien, S.E., Wüest, A., 2006. Fate of rising methane bubbles in stratified waters: How much methane reaches the atmosphere? *J. Geophys. Res.*, 111, C09007, doi:10.1029/2005JC003183.
- 1-18) Shitashima, K., Maeda, Y., Koike, Y., Ohsumi, T., 2008. Natural analogue of the rise and dissolution of liquid CO₂ in the ocean. *Int. J. Greenhouse Gas Control* 2, 95-104.
- 1-19) Italiano, F., Favara, R., Etiope, G., Favali, P., 2001. Submarine emissions of greenhouse gases from hydrothermal and sedimentary areas. In: Cidu, R. (ed.), *Water-Rock Interaction* 10 Vol. 1, 863-866, Swets & Zeitlinger, Lisse.
- 1-20) Loimer, T., Machu, G., Schaflinger, U., 2004. Inviscid bubble formation on porous plates and sieve plates. *Chem. Eng. Sci.* 59, 809-818.
- 1-21) Jaeger, J.C., Cook, N.G.W., Zimmerman, R.W., 2007. *Fundamentals of Rock Mechanics*, 4th Edition. *Blackwell Publishing*.
- 1-22) Berg, R.R., 1975. Capillary pressures in stratigraphic traps. *AAPG Bull.*, 59, 939-956.
- 1-23) 経済産業省 CCS 実証試験実施に向けた専門検討会, 2011. 第1回検討資料1 - 苫小牧地点における貯留層総合評価.
<http://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/sangi/ccs/001_s01_01.pdf> (accessed June 01, 2016)
- 1-24) 深野哲生, 篠原雅尚, 中東和夫, 山田知朗, 望月公廣, 金沢敏彦, 荒木英一郎, 末廣潔, 2007. 海底孔内地震計・海底地震計を用いた北西太平洋海盆の地殻・上部マントル地震波構造, 日本地球惑星科学連合 2007 年大会予稿集(CD-ROM), J169-007.
- 1-25) 林元直樹, 干場充之, 2013. 緊急地震速報における東南海海底地震計活用のための走時補正・マグニチュード補正の検討, 験震時報 76, 69-81.

- 1-26) 河田諒, 2013. 砂状堆積物から漏出する気泡サイズ決定メカニズムに関する研究.
H24 年度東京大学工学部卒業論文.
- 1-27) Li, W., Zhong, W., Jin, B., Xiao, R., Lu, Y., He, T., 2013. Study of the Particle Size Effect on Bubble Rise Velocities in a Three-Phase Bubble Column. *Int. J. Chem., Nucl., Mater. and Metall. Eng.* 7(12), 9996735.
- 1-28) Blackford, J., Stahl, H., Bull, J.M., *et al.*, 2014. Detection and impacts of leakage from sub-seafloor deep geological carbon dioxide storage. *Nature Climate Change* 4, 1011-1016.
- 1-29) Holtzman, R., Szulczewski, M.L. and Juanes, R., 2012. Capillary fracturing in granular media. *Physical Review Letters*, 108:264504.
- 1-30) Jain, A.K., Juanes, R., 2009. Preferential mode of gas invasion in sediments: grain-scale mechanistic model of coupled multiphase fluid flow and sediment mechanics. *J. Geophys. Res.* 114, B08101.
- 1-31) Gostiaux, L., Gayvallet, H., Gérminard, J-C., 2002. Dynamics of a gas rising through a thin immersed layer of granular material: an experimental study. *Granul. Matter* 4, 39-44.
- 1-32) Kong, X-Z., Kinzelbach, W., Stauffer, F., 2010. Morphodynamics during air injection into water-saturated movable spherical granulates. *Chem. Eng. Sci.* 65, 4652-4660.
- 1-33) Rabha, S., Schubert, M., Hampel, U., 2013. Intrinsic Flow Behavior in a Slurry Bubble Column: A Study on the Effect of Particle Size. *Chem. Eng. Sci.* 93 (0): 401-411.

2. LBM-DEM 連成による固気液三相流動シミュレータの開発

本章では本研究において開発した固気液三相流動シミュレータの数値的手法とその基礎物理現象に関する検証について述べる。本シミュレータは砂礫粒子・低粘性流体（水・CO₂）を扱えることを要件とし、将来的な並列化の適用を前提として気液二相流系の格子ボルツマン法（LBM）²⁻¹⁾と離散要素法（DEM）²⁻²⁾を連成した数値プログラムである。流体流動及び流体－固体粒子間の運動量授受を気液二相流系 LBM プログラムを用いて解析し、粒子の位置・速度情報を DEM プログラムに受け渡し固体粒子運動及び拘束圧境界条件を解き、更新された粒子情報 LBM プログラムに返す（Fig.2-1）。

以下、2.1 節では気液二相流 LBM モデル、2.2 節では流体 - 固体粒子間の運動量授受モデル、2.3 節では DEM の固体粒子間相互作用モデルについて述べ、2.4 節で基礎物理現象を用いたモデルの検証について説明する。また、2.5 節では計算モデルの領域・層厚依存性についての検討を述べる。

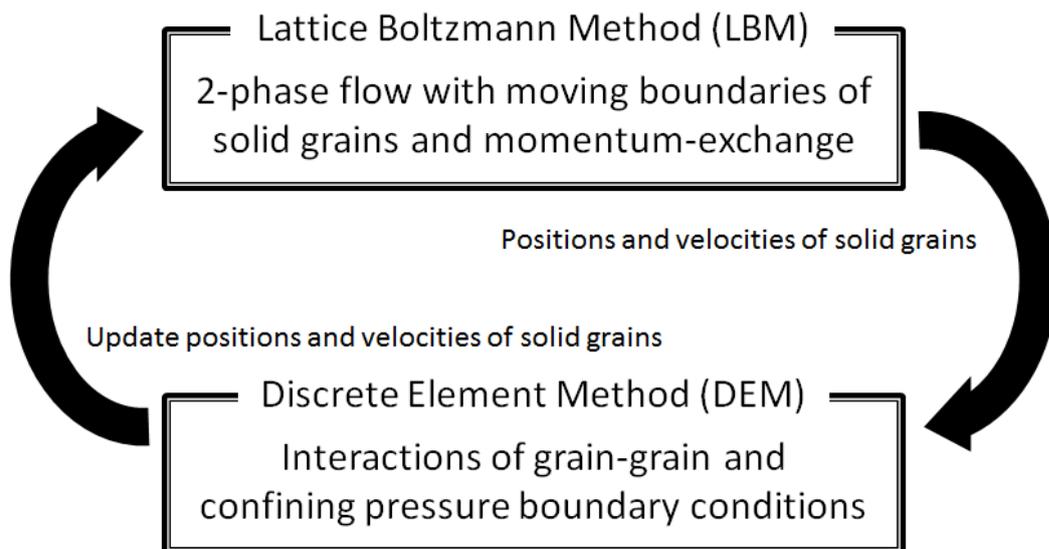


Fig.2-1 Conceptual diagram of coupled program of LBM and DEM.

2.1 気液二相流 LBM モデル

気液二相流系の LBM には幾つかのモデルが提唱されている^{2-3,6)}が、本研究では He *et al.*^{2,6)}の提唱した二つの粒子分布関数 f, g により気液界面インデックス ϕ と流速 \mathbf{u} を解くモデル (HCZ モデル)^{2-6,7)}をベースに低粘性の取り扱いに Inamuro *et al.*^{2,8)}の手法を取り入れた。分布関数 f, g および ϕ, \mathbf{u} との関係式を以下に示す。

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta x, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_f} [f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^c(\mathbf{x}, t)] \quad (2-1)$$

$$g_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta x, t + \Delta t) = g_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_g} [g_i(\mathbf{x}, t) - g_i^c(\mathbf{x}, t)] + 3E_i \left\{ \frac{1}{\rho} \nabla \cdot [\mu(\nabla \mathbf{u} + \mathbf{u} \nabla)] - (1 - \rho_0 / \rho) \mathbf{G} \right\} \cdot \mathbf{c}_i \quad (2-2)$$

$$\phi = \sum_i f_i, \quad \rho = \rho_G + \frac{\phi - \phi_G}{\phi_L - \phi_G} (\rho_L - \rho_G), \quad \mu = \mu_G + \frac{\phi - \phi_G}{\phi_L - \phi_G} (\mu_L - \mu_G) \quad (2-3)$$

$$\mathbf{u} = \sum_i g_i \cdot \mathbf{c}_i \quad (2-4)$$

ここで \mathbf{x} は位置ベクトル, t は時間, τ は緩和時間, ρ_0 は基準密度, ρ は流体密度, μ は粘性係数, \mathbf{G} は重力加速度ベクトルである。下付き L, G はそれぞれ液相・気相を指す。また下付き i はベクトル番号である。 f^c および g^c は平衡関数であり次式で表される。

$$g_{i,r}^c(\mathbf{x}, t) = E_i \left[p' + 3\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u} - \frac{3}{2} \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} + \frac{9}{2} (\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})^2 + \frac{3}{2} \left(\tau_g - \frac{1}{2} \right) \mathbf{c}_i \cdot (\nabla \mathbf{u} + \mathbf{u} \nabla) \cdot \mathbf{c}_i \right] + \frac{\kappa}{\phi} \left(E_i \mathbf{c}_i \cdot \mathbf{J}(\phi) \cdot \mathbf{c}_i - \frac{2}{3} \Omega_i |\nabla \phi|^2 \right) \quad (2-5)$$

$$f_{i,r}^c(\mathbf{x}, t) = E_i \left[1 + 3\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u} - \frac{3}{2} \mathbf{u} \cdot \mathbf{u} + \frac{9}{2} (\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})^2 \right] \left\{ \phi + \left(\tau_f - \frac{1}{2} \right) [(\mathbf{c}_i - \mathbf{u}) \cdot (\nabla \phi - 3\nabla P)] \right\} \quad (2-6)$$

E および Ω は LBM における方向重み付け係数, \mathbf{c} は単位粒子速度ベクトルであり LBM の構造モデルによって与えられる。本研究では以下の 3 次元 15 速度 (D3Q15)

モデルを使用した (Fig.2-2) ²⁻⁸⁾.

$$\begin{aligned}
 & [c_1, c_2, c_3, c_4, c_5, c_6, c_7, c_8, c_9, c_{10}, c_{11}, c_{12}, c_{13}, c_{14}, c_{15}] \\
 & = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & -1 & 1 & 1 & -1 & 1 & -1 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 1 & 1 & -1 & 1 & -1 & -1 & 1 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 1 & 1 & 1 & -1 & -1 & -1 & -1 & 1 \end{bmatrix} \quad (2-7)
 \end{aligned}$$

$$E_1 = 2/9, \quad E_2 = E_3 = E_4 = \dots = E_7 = 1/9, \quad E_8 = E_9 = E_{10} = \dots = E_{15} = 1/72 \quad (2-8)$$

$$\Omega_1 = -7/3, \quad \Omega_i = 3E_i \quad (i=2,3,4,\dots,15) \quad (2-9)$$

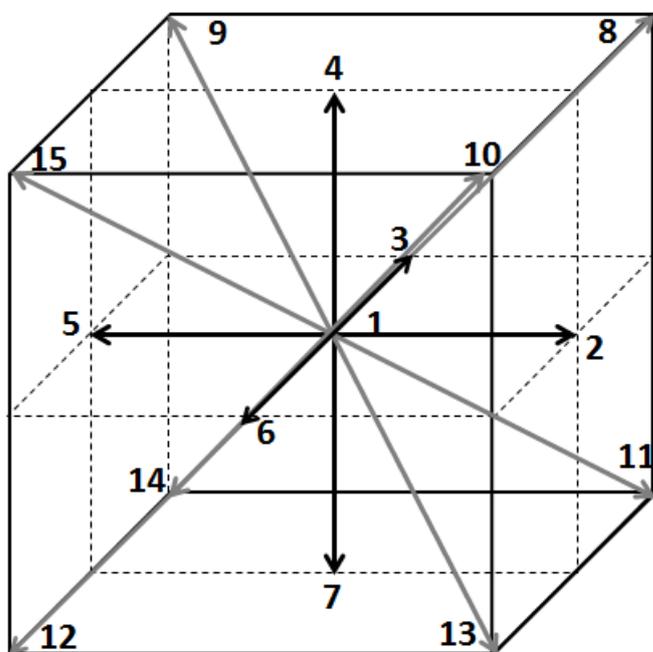


Fig.2-2 Particle velocity distribution of D3Q15 model in LBM.

また p' は流体圧力を密度で割った物理量となり, P_i は熱力学的圧力であり, K は界面張力パラメタ, J は界面インデックスの関数ベクトルであり, 以下の式で表される.

$$p' = \sum_i g_i \quad (2-10)$$

$$\kappa = \frac{3}{2} \frac{\sigma D}{(\phi_L - \phi_c)^2} \quad (2-11)$$

$$\mathbf{J}(\phi) = \frac{9}{2} (\nabla \phi)(\phi \nabla) - \frac{3}{2} |\nabla \phi|^2 \mathbf{I} \quad (2-12)$$

$$P_i = 3\phi \frac{1 + \phi + \phi^2 - \phi^3}{(1 - \phi)^3} - 4\phi^2 \quad (2-13)$$

ここで σ は気液界面張力係数、 D はプログラム内における界面厚さ、 \mathbf{I} は二次元単位テンソルである。

He *et al.*²⁻⁶⁾の二相流モデルでは粘性項は陰に取り扱い、動粘性係数 ν 、緩和時間 τ 、疑似音速 c_0 に以下の関係が成立する。

$$\nu = \left(\tau - \frac{1}{2} \right) \frac{c_0}{3} \Delta x \quad (2-14)$$

即ち二相のうち粘性 ν が小さい相には、格子長さ Δx および時間刻み $\Delta t (= \Delta x / c_0)$ は相によって不変であるため、緩和時間 τ を相によって変化させる必要がある。しかしながら、緩和時間 τ に小さい値を与えると計算の不安定性に繋がってしまい、あまり大きな粘性係数の差のある二相流は扱えないという問題があった。

この問題を解決するため、Inamuro *et al.*²⁻⁸⁾は粘性項を陽に取り扱うことで緩和時間 τ 、疑似音速 c_0 を式(2-14)の粘性 ν との関係から切り離し、任意に与えることを可能にした。即ち、式(2-5)の右辺第5項で陰に含まれる粘性項を相殺し、式(2-2)の右辺第4項に粘性 $\nu (= \mu/\rho)$ を陽に与えた粘性項を付加するというものである。本シミュレータでは低粘性流体である水・気相 CO_2 の流れを $\text{O}(10^{-1}) - \text{O}(10^0)$ mm オーダーの砂礫粒子層において安定に解析するため、本手法を取り入れ、緩和時間 $\tau = 1$ とした。

なお、本研究で構築したLBMモデルにおいて、物理量は疑似音速 c_0 、格子長さ X 、基準密度 ρ_0 で以下のように無次元化される。

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{u}} &= \mathbf{u}/c_0, \quad \hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}/X, \quad \hat{\rho} = \rho/\rho_0, \quad \hat{m} = mX^3/\rho_0, \quad \hat{p} = p/c_0^2, \\ \hat{\mu} &= \mu/(\rho_0 c_0 X), \quad \hat{\sigma} = \sigma/(\rho_0 c_0^2 X), \quad \hat{\omega} = \omega X/c_0, \quad \hat{\mathbf{G}} = \mathbf{G}X/c_0^2 \end{aligned} \quad (2-15)$$

2.2 LBM における移動境界と流体-固体間運動量伝達

二相流 LBM プログラムでは固体粒子の表面を移動境界 (moving boundary) として取り扱い、運動量の授受を計算する。

格子点間距離比 $\Delta[0:1]$ に位置する移動速度 \mathbf{V}_p の固気液界面において接触角 θ を持つ移動境界における流体の補間速度 \mathbf{u}_w 、界面インデックス ϕ_w 、粒子分布関数 f 、および流体から質量 m の固体へ受け渡される運動量 \mathbf{P} と角運動量 \mathbf{L} およびその速度 $\mathbf{V}_p \cdot$ 角速度 $\boldsymbol{\omega}_p$ の更新は以下の式で表される (Fig.2-3) ^{2-9, 10}。

$$\mathbf{u}_w = \begin{cases} \frac{\Delta-1}{\Delta+1} \mathbf{u}_f + \frac{1}{\Delta+1} \mathbf{V}_p & \Delta < 1/2 \\ \frac{\Delta-1}{\Delta} \mathbf{u}_f + \frac{1}{\Delta} \mathbf{V}_p & \Delta \geq 1/2 \end{cases} \quad (2-16)$$

$$\cos \theta = \frac{1}{2} \tilde{\phi} (3 - \tilde{\phi}^2) \quad (2-17)$$

$$\phi_w = \phi_L + \frac{\phi_L - \phi_G}{2} (\tilde{\phi} - 1)$$

$$f_i(\mathbf{x}, t + \Delta t) = \begin{cases} 2\Delta f_i^c(\mathbf{x}, t) + (1 - 2\Delta) f_i^c(\mathbf{x} - \mathbf{c}_i \Delta t, t) - 2\Omega_i \Delta \mathbf{c}_i \cdot \mathbf{V}_p & \Delta < 1/2 \\ \frac{1}{2\Delta} f_i^c(\mathbf{x}, t) + \frac{2\Delta - 1}{2\Delta} f_i^c(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\Delta} \Omega_i \mathbf{c}_i \cdot \mathbf{V}_p & \Delta \geq 1/2 \end{cases} \quad (2-18)$$

$$\mathbf{P} = \sum \rho (g_i^c + g_i) \mathbf{c}_i + m \mathbf{G} \quad (2-19)$$

$$\mathbf{L} = \mathbf{x}_i \times \mathbf{P} \quad (2-20)$$

$$\mathbf{V}_p^{t+1} = \mathbf{V}_p^t + \frac{\mathbf{P}}{m} \Delta t \quad (2-21)$$

$$\boldsymbol{\omega}_p^{t+1} = \boldsymbol{\omega}_p^t + \frac{\mathbf{L}}{m} \Delta t \quad (2-22)$$

なお、粒子分布関数 g における境界条件は式(2-18)の f に g を代入したものである。

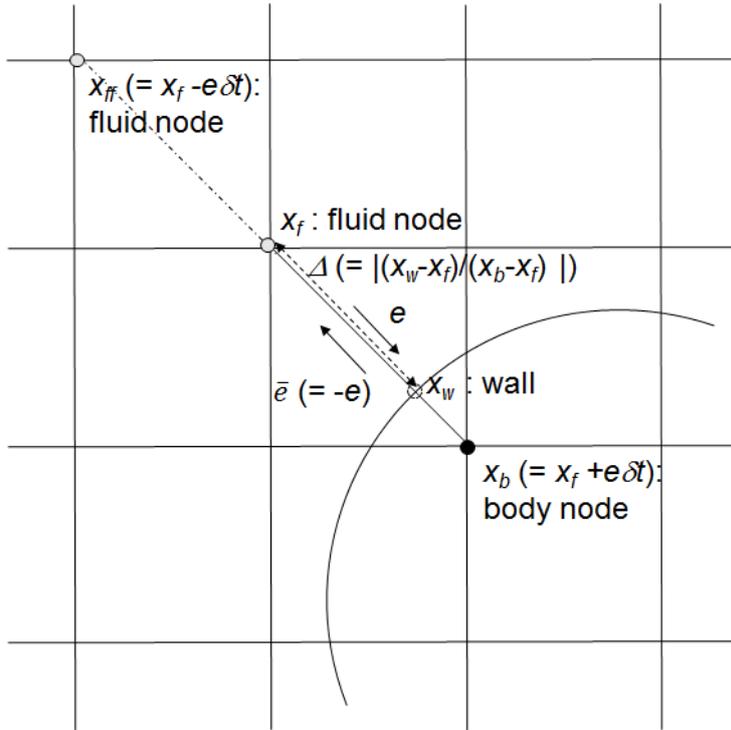


Fig.2-3 Conceptual diagram of the collision process for velocities of opposite direction.

2.3 DEM による固体間相互作用

本研究において固体粒子 - 固体粒子の相互作用・運動はDEMプログラムであるESyS-Particle²⁻¹¹⁾を用いて計算した。固体粒子を球形要素でモデル化し、要素の運動を逐次追跡して解析する。質量 m および慣性モーメント I を持ち減衰定数 C , D , 合力 \mathbf{F} , トルク \mathbf{N} が働く球形要素の運動方程式は次式で表される²⁻¹²⁾。

$$m_i \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{x}_i + C_i \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{x}_i + \mathbf{F}_i = 0 \quad (2-23)$$

$$I_i \frac{\partial^2}{\partial t^2} \boldsymbol{\theta}_i + D_i \frac{\partial}{\partial t} \boldsymbol{\theta}_i + \mathbf{N}_i = 0 \quad (2-24)$$

また、粒子間の相互作用に関し、粒子 i と粒子 j の衝突によって加わる弾性力 \mathbf{F}_{ij} および摩擦力 \mathbf{F}_{ij}^D は粒子の重なり距離 δ_{ij} を用いて以下のように表される。

$$\mathbf{F}_{ij} = k_{ij} \delta_{ij} \mathbf{e}_{ij} \quad (2-25)$$

$$\mathbf{F}_{ij}^D = -\mu_D F_{ij}^n \mathbf{e}_{ij}^T \quad (2-26)$$

ここで、 k_{ij} はバネ定数、 \mathbf{e}_{ij} は接触方向の単位速度ベクトルである。また μ_D は摩擦係数、 F_{ij}^n は法線方向の力の大きさ、 \mathbf{e}_{ij}^T は接線方向の単位速度ベクトルである。粒径 d 、ヤング率 E 、ポワソン比 ν を持つ二粒子 i, j が衝突する時、バネ定数 k_{ij} は以下のように表される。

$$k_{ij} = \frac{2\sqrt{2}}{3} E^* (d^* \delta)^{1/2}$$

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1-\nu_i^2}{E_i} + \frac{1-\nu_j^2}{E_j} \quad (2-27)$$

$$\frac{1}{d^*} = \frac{1}{d_i} + \frac{1}{d_j}$$

本シミュレータでは DEM の鉛直上方以外の計算領域境界を外部の粒子充填層として壁とみなして取り扱う。粒子と壁の衝突におけるバネ定数は式(2-27)において壁の d を無限長（即ち $d^* \sim d_i$ ）としたものとなる。

2.4 基礎物理モデル検証

本節では前節までにて構築したシミュレータを用いて固気液三相流動における基礎的な物理現象の再現を行い、モデルの検証を行った。各物理現象では主に水深 200 m の海底下に相当する 2 MPa、10 °C における水および CO₂ と海底堆積物中の砂礫粒子を想定している。各物性値を Table 2-1 に示す。

Table2-1 Physical properties for three-phase simulation.

Properties	
Density of liquid ρ_L (kg/m ³)	1.00×10^3
Density of gas ρ_G (kg/m ³)	4.30×10^1
Viscosity of liquid μ_L (Pa-s)	1.00×10^{-3}
Viscosity of gas μ_G (Pa-s)	1.00×10^{-5}
Surface tension coefficient σ_{LG} (N/m)	7.28×10^{-2}
Contact angle θ (°)	26.0

2.4.1 単相一様流中の球にかかる抗力モデル

本項では流体 - 固体間の相互作用の再現を確認するため、単相一様流中に固定された球にかかる抗力をシミュレーションし、既往の理論・経験式との比較を行った。一様流中の球にかかる抗力係数 C_D は Stokes の抵抗法則や Newton 域の実験値を用いて下式のように理論・経験式が成立している²⁻¹³⁾。

$$C_D = \begin{cases} 24 \text{Re}^{-1} & \text{Re} < 1 \\ (0.55 + 4.8/\sqrt{\text{Re}})^2 & 1 \leq \text{Re} < 10^3 \\ 0.44 & \text{Re} > 10^3 \end{cases} \quad (2-28)$$

ここで Re はレイノルズ数 ($= u d_p \rho / \mu$) である。Table 2-1 の物性値と一様流速 $u = 0.1$ (m/s), 球径 $d_p = 4$ (mm) を式(2-28)に代入すると液単相において $\text{Re} = 400$ であり $C_D = 0.62$, 気単相において $\text{Re} = 1720$ であり $C_D = 0.44$ となる。

この現象を再現するため、開放系境界の単相領域に静止球を設置し $x = 0$ 端に一定流速を与える計算モデルを構築しその抗力係数をシミュレーションした。Fig.2-4 に各相の圧力分布と速度ベクトルのシミュレーション結果, Fig.2-5 にシミュレーションによって得られた抗力係数と式(2-28)を用いて得られた参照値を示す。気単相では計算終盤

に高レイノルズ数における渦が発生して値の乱れが起きているが、液単相・気単相の双方において既往の理論・経験式と整合の取れた抗力が再現できていることが分かる。

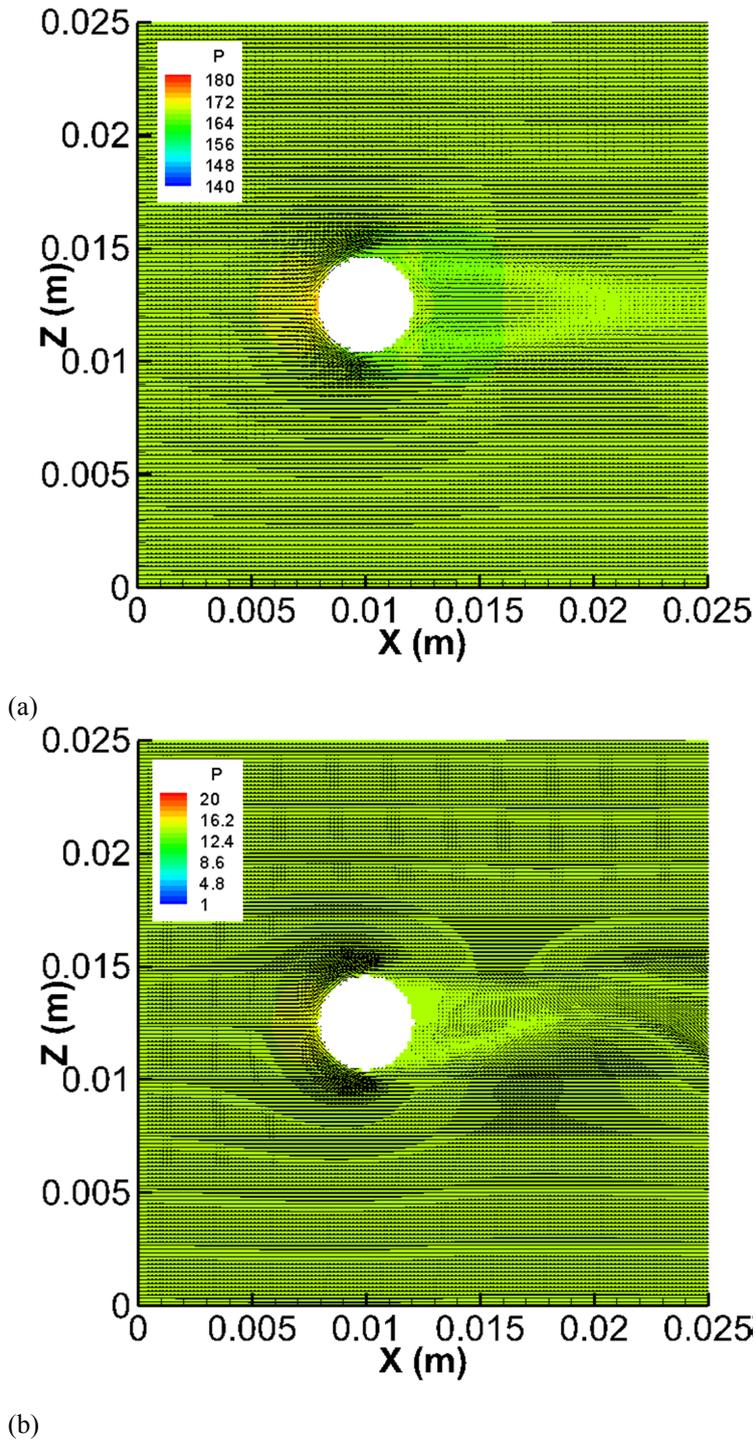
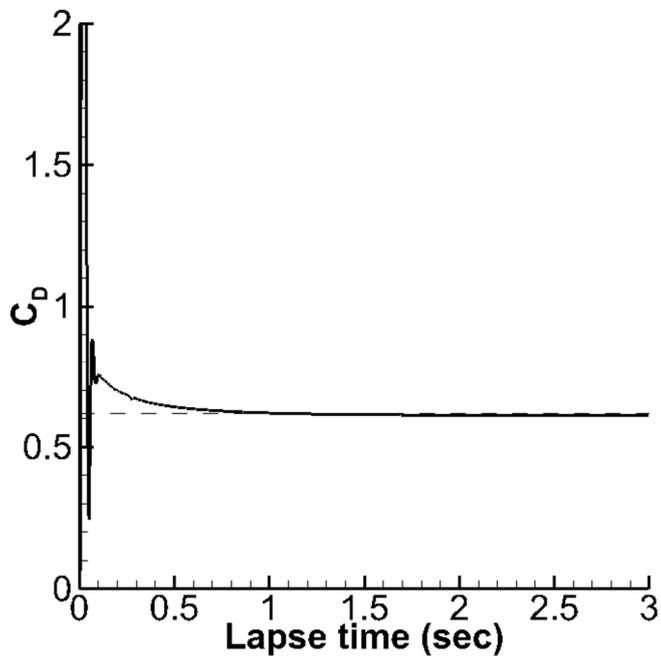
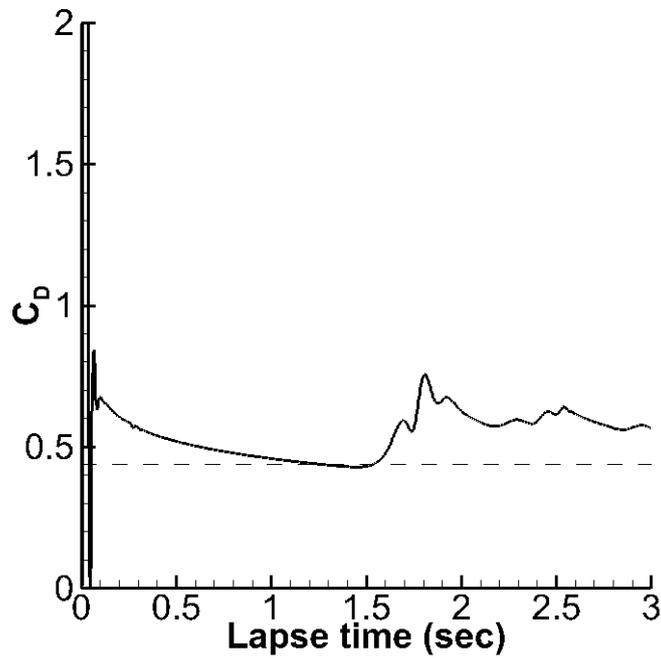


Fig.2-4 Pressure distribution and vectors of flow velocity in (a) single liquid phase and (b) single gas phase.



(a)



(b)

Fig.2-5 Simulated drag coefficient (solid line) and reference value derived from Eq. (2-28) (dashed line) in

(a) single liquid phase and (b) single gas phase. Last part of velocity in gas phase indicates vortex

effect with high Reynolds number.

2.4.2 単一気泡上昇モデル

本項では二相流挙動の再現を確認するため、静止水中における気泡上昇をシミュレーションし、その形状および上昇速度を既往の数値モデル^{2-14, 15)}と比較した。気泡の運動方程式は等価球径 d_{eb} を用いて下式のように与えられる。

$$\frac{d\mathbf{u}_r}{dt} = \frac{\Delta\rho}{\rho_G} \mathbf{G} - \frac{3}{4} C_D \frac{\rho_L}{\rho_G} \frac{\mathbf{u}_r^2}{d_{eb}} \quad (2-29)$$

また、気泡の抗力係数はそのサイズにより下式のようにモデル化される^{2-14, 15)}。

$$\begin{aligned} C_D &= 24 \text{Re}^{-1} (1 + 0.15 \text{Re}^{0.687}) & d_e < 0.98(\text{mm}) \\ C_D &= 48 \text{Re}^{-1} G(\chi) [1 + H(\chi) \text{Re}^{-1/2}] & 0.98(\text{mm}) \leq d_e < 18(\text{mm}) \\ \chi &= 1 + 0.63 \text{Eo}^{0.757} & \\ C_D &= \frac{8}{3} \text{Eo} (\text{Eo} + 4)^{-1} & d_e > 18(\text{mm}) \end{aligned} \quad (2-30)$$

ここで Eo はエトベス数であり $\text{Eo} = g d_{eb}^2 \sigma^{-1} \Delta\rho$ と表される。 $G(\chi)$ および $H(\chi)$ は楕円体の長短径比 χ の関数であり Moore²⁻¹⁵⁾ による。式(2-29)の運動方程式と式(2-30)による抗力係数の繰り返し計算により、気泡の終端上昇速度が解析的に求められる。Table 2-1 の物性値と気泡径 $d_{eb} = 4$ (mm) を与えると終端上昇速度は $u = 0.32$ (m/s) と求められる。

この現象をシミュレーションで再現するために水平方向に開放系、鉛直方向周期境界の静止水カラムを模擬した計算領域下部に、径 $d_{eb} = 4$ (mm) の気泡を配置した計算モデルを作り、気泡の上昇速度と形状を観察した。なお、鉛直方向の周期境界を設けたことにより 2 周目以降の液相は速度が残るため、気相と液相の速度差を求めている。

Fig.2-6 にシミュレーションによって得られた気泡上昇速度と参照解析値、Fig.2-7 に上昇する気泡の形状図を示す。

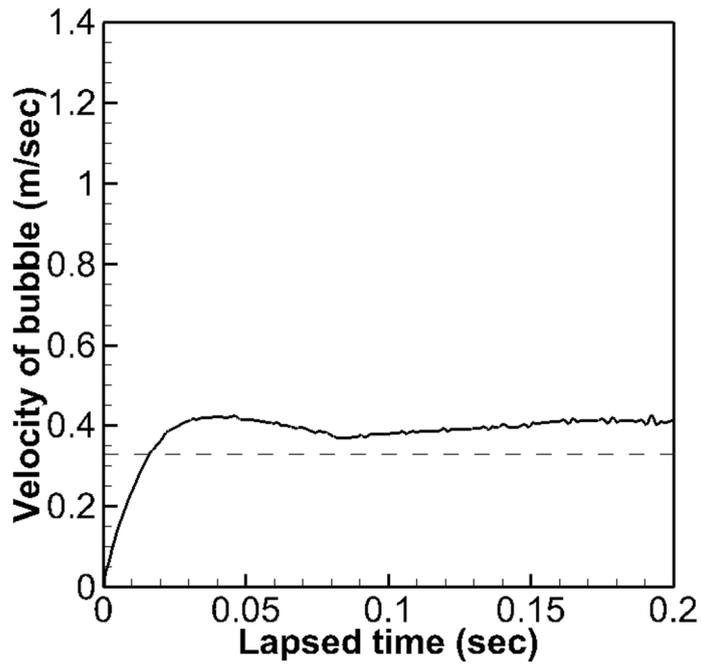


Fig.2-6 Simulated rising velocity of bubble (solid line) and reference value derived from Eq. (2-29) and Eq. (2-30) (dashed line).

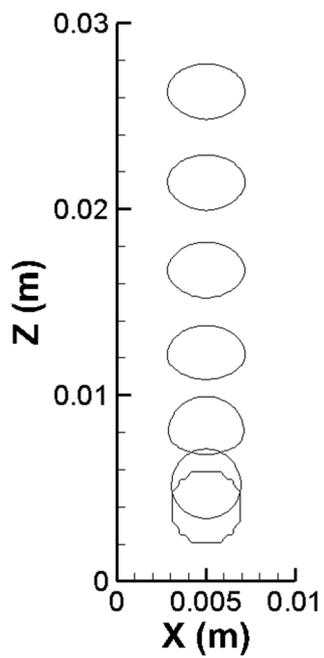


Fig.2-7 Change in shape of rising bubble.

鉛直方向 2 周目以降にやや液相の渦流れの影響が出ているが、参照解析値とほぼ同等の上昇速度が得られた。また同条件においてエトベス数 $Eo = 2.06$ ，モルトン数 $Mo (= g\mu_L^4 \Delta\rho/\rho_L^2 \sigma^3) = 2.44 \times 10^{-11}$ となり，Clift *et al.*²⁻¹⁴⁾の形状図では楕円体の領域となるがシミュレーションで得られる気泡の形状もこれと良好に合致する (Fig.2-7)。

2.4.3 円筒における毛管圧モデル

本項では固気液三相の毛管現象を検証するため，円筒における毛管圧の再現を行った。気液界面張力 σ_{LG} ，接触角 θ の固気液三相に関し直径 d の円筒における毛管圧 P_c は次式で表される。

$$P_c = \frac{4\sigma_{LG} \cos\theta}{d} \quad (2-31)$$

接触角 θ は固気液各相間の界面張力係数 $\sigma_{\alpha\beta}$ ($\alpha, \beta = S: \text{solid}, G: \text{gas}, L: \text{liquid}$) を用いて以下のように表される (Fig.2-8)。

$$\cos\theta = \frac{\sigma_{SG} - \sigma_{SL}}{\sigma_{LG}} \quad (2-32)$$

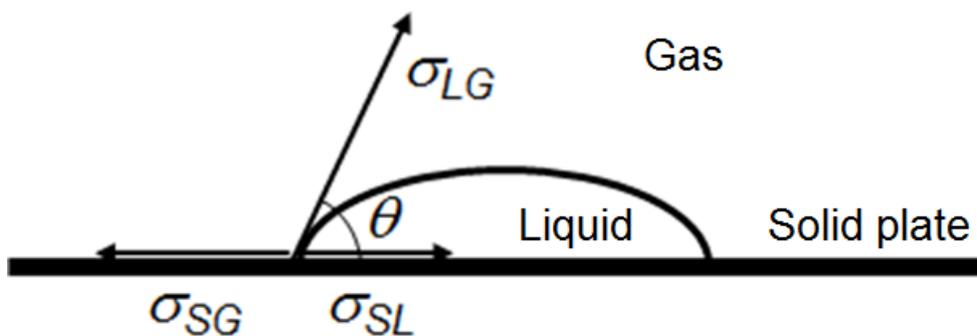


Fig.2-8 Conceptual diagram of contact angle.

本シミュレータでは接触角 θ 、気液界面張力 σ_{LG} を入力パラメタとして明示的に与える。そこで、この2パラメタに加え管径 d の円筒をモデルとして式(2-31)の毛管圧 P_C が再現できるかを検証した。

本項では毛管圧トラップが主に働く地下深部を対象とする。Sorai *et al.*²⁻¹⁶⁾は海底下貯留における貯留層・シール層深度となる地下深度 1000 m を想定した温度・圧力 40 °C ・ 10 MPa においてシール層のスロート径を想定し、平板に一定径の毛管を配置したキャピラリープレートを使用して、毛管圧の測定を行った。その結果、管径 $d = 1.0$ (μm) のキャピラリープレートにおいて毛管圧 $P_C = 69.1$ (kPa) が得られている。これを式(2-31)に代入すると界面張力と接触角の間に $\sigma_{LG} \cdot \cos\theta = 1.73 \times 10^{-2}$ (N/m) の値が求められる。Sorai *et al.*²⁻¹⁶⁾の実験では σ_{LG} 、 $\cos\theta$ 個々の値を計測していないが、温度・圧力 40 °C ・ 10 MPa の条件下における CO₂ - 水 - シリカ系の界面張力および接触角については、既往の実験において $\sigma_{LG} = 2.4 \times 10^{-2} - 3.3 \times 10^{-2}$ (N/m)、接触角 $\theta = 20^\circ - 60^\circ$ の観測値が得られている^{2-17, -18)}。ここから $\sigma_{LG} \cdot \cos\theta = 1.73 \times 10^{-2}$ (N/m) なる組み合わせを考慮するとその範囲は $[\sigma_{LG}, \cos\theta] = [2.4 \times 10^{-2}$ (N/m), $44^\circ] - [3.3 \times 10^{-2}$ (N/m), $58^\circ]$ となる。したがって、本研究ではこの範囲における σ_{LG} 、 $\cos\theta$ の組み合わせをいくつか用いて管径 $d = 1.0$ (μm) の円筒における毛管圧 $P_C = 69.1$ (kPa) が本シミュレータで再現できるかを検証した。用いた $[\sigma_{LG}, \cos\theta]$ の組み合わせを Table 2-2 に、温度・圧力 40 °C ・ 10 MPa の条件下における水・CO₂ の他の物性値を Table 2-3 に示す。シミュレーションでは Sorai *et al.*²⁻¹⁶⁾の実験で用いられた段階昇圧法²⁻¹⁹⁾を模擬し、内部と上部を液相で充填した円筒の下端にガスチャンバーを配置して、上端を一定圧力に保った上で下端に段階的な昇圧を行う計算を行った (Fig.2-9)。圧力の時間変化と共に円筒中心軸上の数点に置いた計測点の気相飽和度を求め、円筒でガスのブレイクスルーが起こる圧力差をシミュレーションした。Fig.2-10 にその結果と Sorai *et al.*²⁻¹⁶⁾の実験で得られた毛管圧測定値を参照に示す。黒実線は段階的に昇圧

した上端と下端の圧力差の時間変化であり、青・緑・橙の線はそれぞれ Fig.2-9 に示す円筒中の下部・中部・上部の観測点における気相飽和度である。初期状態で液相（気相飽和度 0）であった全ての観測点は段階的な昇圧の間も液相状態が続くが、ある圧力差に達すると気相（飽和度 1）で満たされている。つまり、この圧力差においてガスのブレイクスルーが確認されており、式(2-31)における理論式から求めたパラメタの関係とシミュレーション結果が良好な合致を得ていることが分かる。

以上によって、本研究で開発したシミュレータが固気液三相における基礎的な物理現象をよく再現することが示された。

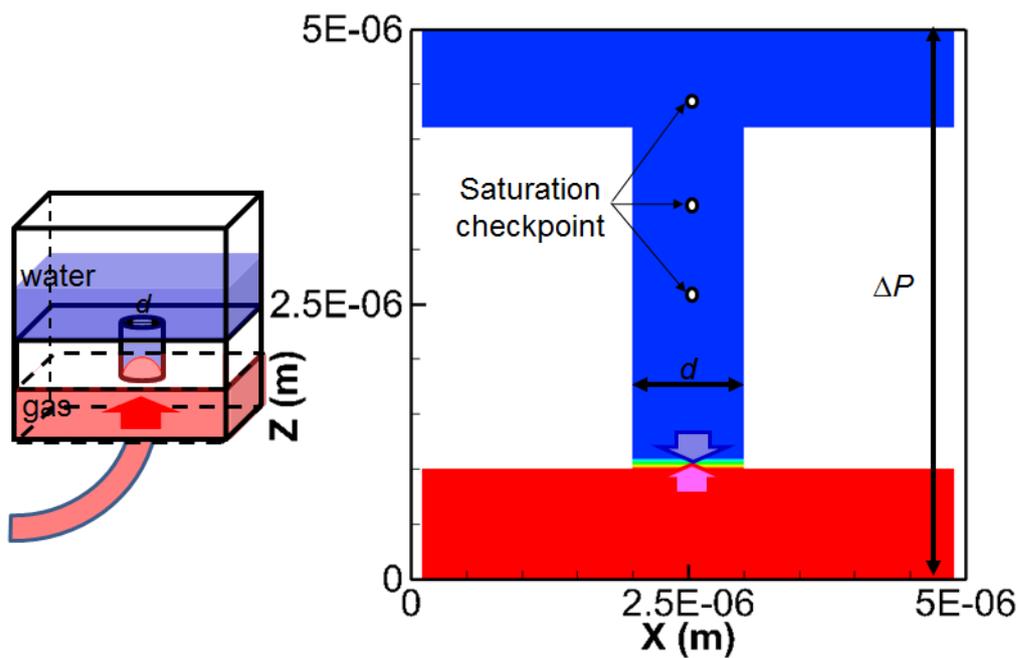


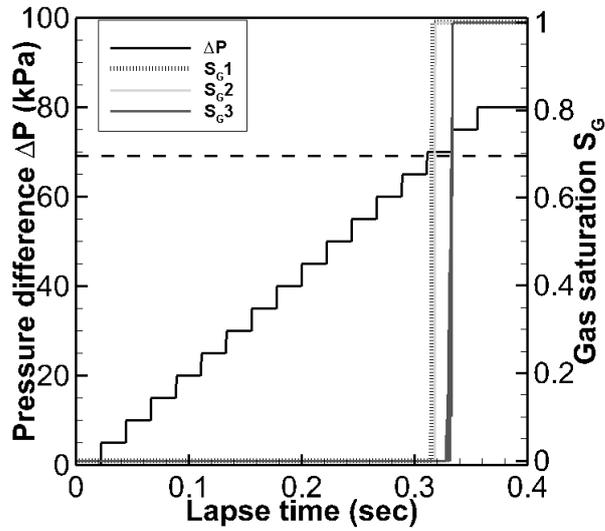
Fig.2-9 Conceptual diagram of simulated step-up method. Gas chamber is set at the bottom of a circular tube, and inside and top of the tube is filled with water. Pressure at the top of the domain is maintained constant and that at the bottom is escalated in incremental steps. Gas phase saturation is recorded at three depth at the central axis of the tube to observe breakthrough of gas.

Table2-2 Combination of surface tension coefficient and contact angle for simulation of capillary pressure.

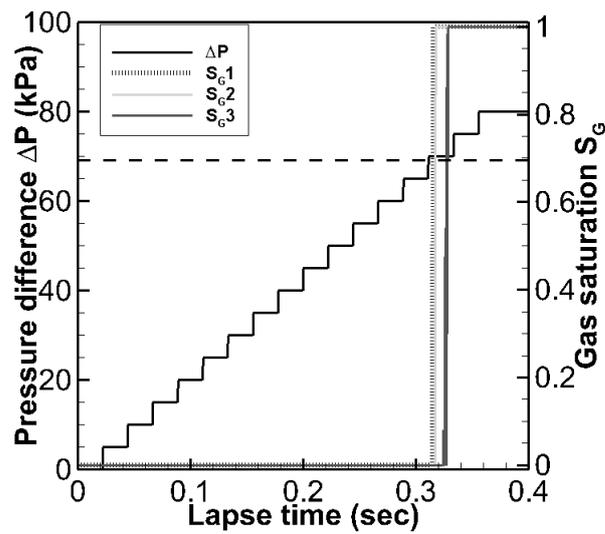
Properties/Case	Case 1	Case 2	Case 3
Surface tension coefficient σ_{LG} (N/m)	2.45×10^{-2}	2.69×10^{-2}	3.02×10^{-2}
Contact angle θ ($^{\circ}$)	45.0	50.0	55.0

Table2-3 Physical properties for simulation of capillary pressure.

Properties	
Density of liquid ρ_L (kg/m ³)	9.96×10^2
Density of gas ρ_G (kg/m ³)	6.29×10^2
Viscosity of liquid μ_L (Pa-s)	6.54×10^{-4}
Viscosity of gas μ_G (Pa-s)	4.78×10^{-5}
Surface tension coefficient σ_{LG} (N/m)	2.69×10^{-2}
Contact angle θ ($^{\circ}$)	50.0

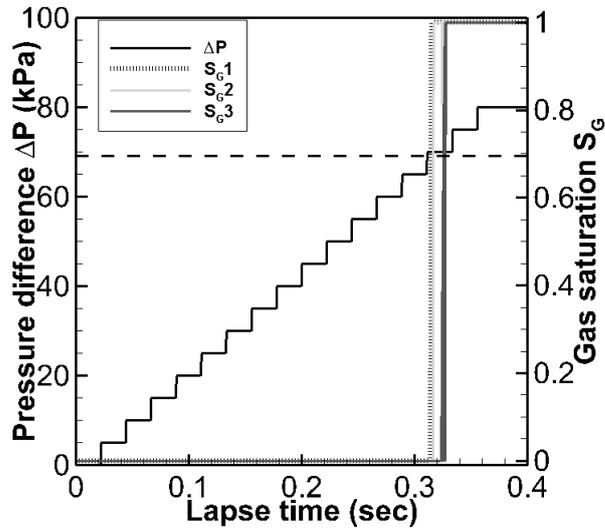


(a)



(b)

Fig.2-10 Simulated breakthrough of gas for different combination of $\sigma_{LG} \cdot \cos\theta = 1.73 \times 10^{-2}$ (N/m) and reference value of capillary pressure derived from Sorai *et al.*²⁻¹⁶⁾ (Dashed-line). $[\sigma_{LG}, \cos\theta] =$ (a) $[2.45 \times 10^{-2}$ (N/m), 45°], (b) $[2.69 \times 10^{-2}$ (N/m), 50°], and (c) $[3.02 \times 10^{-2}$ (N/m), 55°]. Black solid-line indicates pressure difference between the top and bottom of the computational domain. Other lines indicate gas saturation at the central axis of the circular tube. Dotted-line indicates the lower point, light gray-colored line indicates the middle point, and gray-colored line indicates the upper point in Fig2-9. (Continued.)



(c)

Fig.2-10 (Contd.) Simulated breakthrough of gas for different combination of $\sigma_{LG} \cdot \cos\theta = 1.73 \times 10^{-2}$ (N/m) and reference value of capillary pressure derived from Sorai *et al.*²⁻¹⁶ (Dashed-line). $[\sigma_{LG}, \cos\theta] =$ (a) $[2.45 \times 10^{-2}$ (N/m), 45°], (b) $[2.69 \times 10^{-2}$ (N/m), 50°], and (c) $[3.02 \times 10^{-2}$ (N/m), 55°]. Black solid-line indicates pressure difference between the top and bottom of the computational domain. Other lines indicate gas saturation at the central axis of the circular tube. Dotted-line indicates the lower point, light gray-colored line indicates the middle point, and gray-colored line indicates the upper point in Fig2-9.

2.5 固気液三相流動シミュレーションにおける領域サイズ依存性

本節では前節までにて開発・検証したシミュレータを用いた、固気液三相流動シミュレーションにおける領域サイズ依存性について述べる。

本研究では固相粒子の形状および形成されるスロートを十分解析するため、格子幅を粒径の 0.125 倍に抑えている^{2-20, 21)}。粒径 0.1 - 数 mm の砂礫粒子を解析する格子幅に対し、フィールドスケールの計算領域を設けることは計算コストの多大なる増大に繋がるため、本研究ではシミュレーションに、海底堆積物のごく表面にガス溜まりが形成され、その上に薄い砂礫層が乗っているというケースを想定した計算モデルを用いることとした。この時、計算の領域サイズは、気泡を解析し数個の吹き出し口が形成されるのに必要十分な大きさ取る。その上で、LBM の計算領域において鉛直下端の全面を、一定流速を有するガス端とすると共に、水平方向境界は流体に対してフリースリップとした。また、DEM の計算領域においては鉛直上方以外の計算領域境界を壁として取り扱う。Fig.2-11 に計算領域の概念図を示す。LBM において境界際での固体粒子充填の偏りを防ぐため、一旦計算に用いる領域より大きな領域で固体粒子の充填を行い、内側を切り出す。固体粒子層の形成については、2.5.1 節に詳細を述べる。DEM の計算領域は LBM の領域より水平方向に僅かに大きく、計算初期状態の充填固体粒子の水平端に接するよう壁境界を設けている。全体が LBM の領域内に収まらない固体粒子は、領域外の固体粒子表面にかかる力が欠落するため、流体から受ける力は計算せず、DEM 上で固体粒子同士または壁衝突による影響のみを受けるものとする。

本節ではこれらの境界条件を用いることによって水平領域サイズがシミュレーション結果に与える影響を把握するための計算を行った。なお格子サイズについては LBM の特性上、格子サイズに対して模擬音速 c_0 および緩和時間 τ の決定が必要となるため、本研究では粒径の 0.125 倍で一定とした。また鉛直領域サイズは、固体粒子層を抜けたガスが気泡を形成する水カラムを設けるため、粒径の 18.75 倍とした。

検証計算は水圧 2 MPa, 温度 10 °C の海底堆積物表面を想定した水と CO₂ の物性を用い, 層粒子の粒径を 2.0 mm とした. 水と CO₂ の物性は Table 2-1 と同様である. また, 固体粒子には石英・長石を主要成分とする一般的な砂粒子を想定して与えた物性を Table 2-4 に示す.

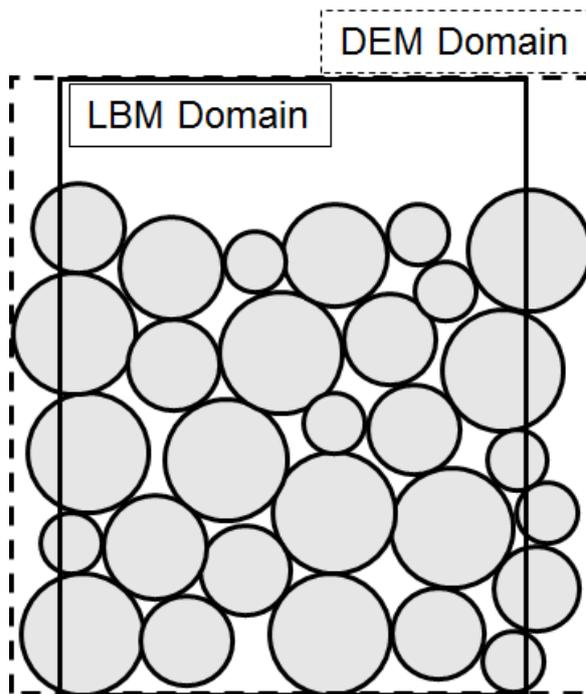


Fig.2-11 Conceptual diagram of calculation domain.

Table2-4 Physical properties for solid phase.

Properties	
Density of solid ρ_s (kg/m ³)	2.40×10^3
Young modulus of solid (GPa)	73.1
Poisson ratio of solid	0.17
Dynamic friction coefficient of solid	0.1
Static friction coefficient of solid	0.6

2.5.1 ガスみち・気泡形成挙動の解析手法

本研究では水で飽和した砂層を模擬した固体粒子層において、ガス流入によるガスみちおよび気泡形成挙動を、固気液三相流動シミュレーションにより解析した。河田²⁻²²⁾の実験において粒径 1.81 - 2.00 mm の細砂（大）（河田²⁻²²⁾の分類ママ）を用いたケースでは、短いノズル状のガスみちが形成され、ガスが安定して供給されることにより、連続的に気泡が放出されることが認められている。即ち、この粒径の層における気泡形成挙動は、ノズルからの気泡形成挙動との類似が予測できる。ノズルからの気泡形成挙動は、密度・粘性・界面張力を一定とした場合、オリフィス径および流量が主な影響因子となっているため²⁻²²⁾、本研究でもこれに相当するパラメタを解析することとした。本シミュレーションでは砂層底面に一定の単位面積あたり流量($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$)を与えているが、河田²⁻²²⁾の実験同様、ケースによっては複数のガスみちが形成された。したがって本研究ではガスみちおよび気泡のサイズに関し、与えた単位面積あたり流量および形成されたガスみち 1 本あたりの流量 ($\text{m}^3/\text{sec}/\text{channel}$) について解析した。また形成されたガスみちサイズに対する気泡サイズについても解析している。各データの解析手法について以下に示す。

(1) 固体粒子層の初期状態間隙率の算出

本研究の計算モデルでは、領域下部にガスが流入する砂層を設け、上部に生成した気泡が抜ける水カラムを設けている (Fig.2-12)。下部の砂層の充填は以下の手順で行った。

1. 粒径、参照間隙率を与えて、周期境界条件の成長法によるパッケージ作成を行う。
2. 成長法パッケージの繰り返し配置により拡大計算領域に砂粒子を充填する。
3. 重力沈降計算を行い、粒子の動きが落ち着いた充填状態から実際に計算に用いる面積・高さを切り出し、上部に水カラムを設置して固気液三相計算の初期状態とする。

この時、重力沈降計算後の初期砂層の間隙率は以下の通り算出する (Fig.2-13).

1. 各水平座標(x, y)において最大固相高さ $z_s(x, y)$ を求める.
2. $z_s(x, y)$ の最小値 z_{smin} を求め、それ以下の領域の固体・流体割合を算出する.

また、この $z = z_{smin}$ の平面を形成されたガスみちの断面積を求める断面とする.

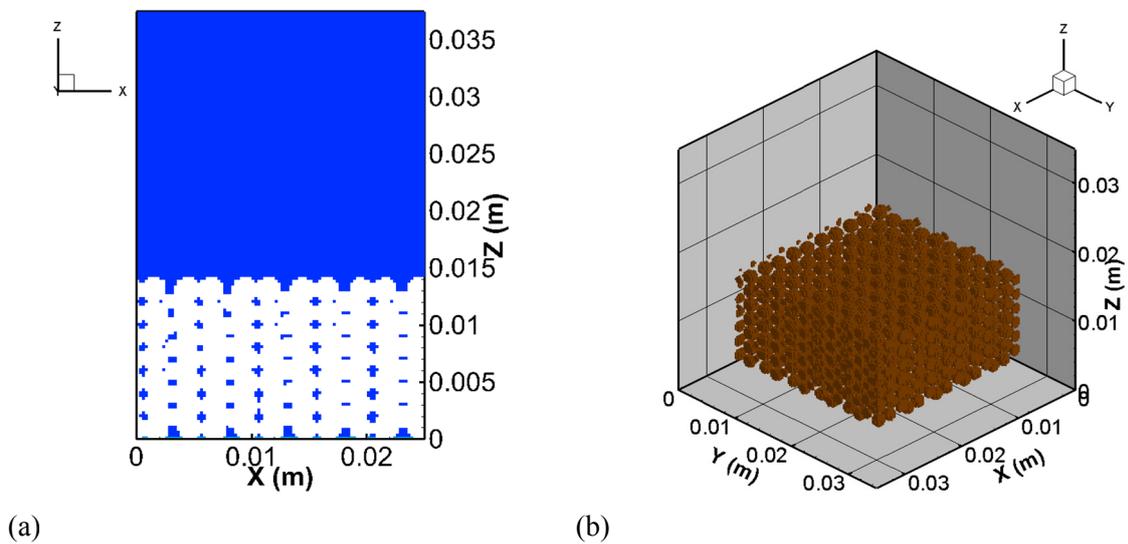


Fig.2-12 Conceptual diagram of simulation model in (a) 2D and (b) 3D view. Water-filled layer of sand grains is set at the base of computational domain and water column is set the above. Gas flows in from the bottom with constant flow velocity ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$).

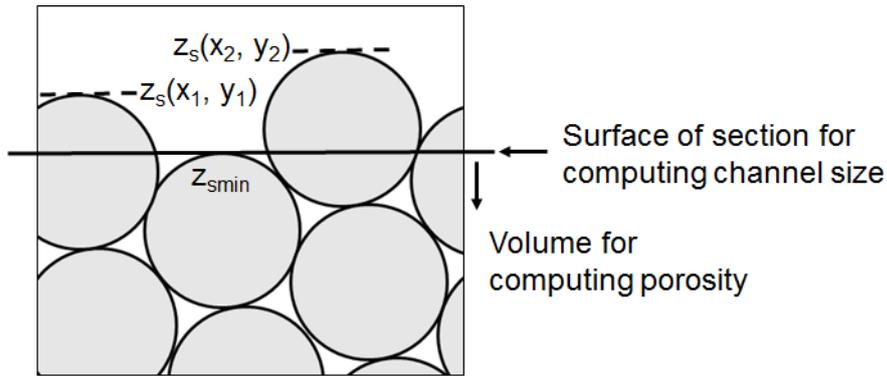


Fig.2-13 Conceptual diagram of computing porosity and channel size. $z_s(x, y)$ is the top position of solid phase in each point of (x, y) , and z_{smin} is the lowest point of $z_s(x, y)$ among the domain. Gas channel size is computed at x - y plane at $z = z_{smin}$ and porosity of sand layer is computed using volume below that plane.

(2) 形成される気泡径の算出

本研究における各ケースで形成される気泡径については、スナップショットデータを用いて以下のように算出した。なお、スナップショットの出力間隔は、気泡の代表上昇速度で、水カラムの長さ L_w を移動するのにかかる時間として、同一気泡のカウントを避けるようにしている。

1. シミュレーションの各 3D スナップショットデータにおいて、Fig.2-14 赤丸内のように分離した気泡の体積 V を求める。
2. 気泡を球形と仮定し下式のように等価径 d_{eb} を求める。

$$d_{eb} = \left(\frac{6}{\pi} V \right)^{1/3} \quad (2-33)$$

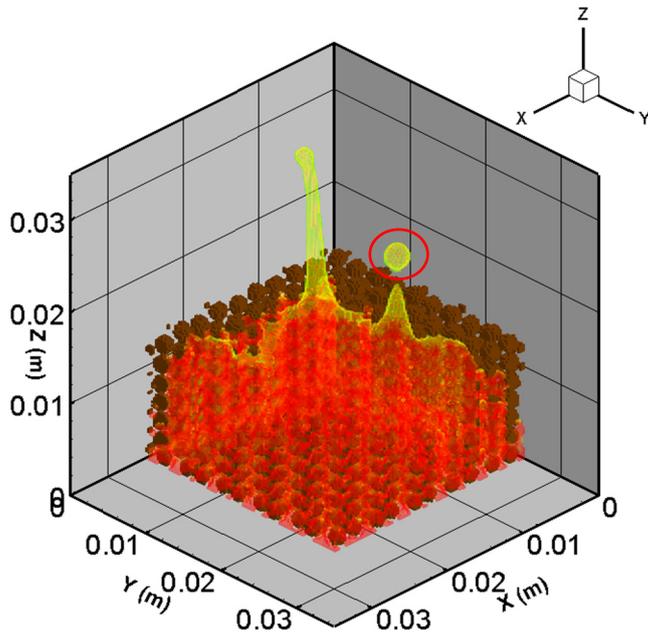


Fig.2-14 Conceptual diagram of separated bubble for computing bubble diameter.

(3) 形成されるガスみちサイズの算出

本研究における各ケースで形成されるガスみちの定義は Fig.2-15 の青丸箇所のように砂層表面までガスが抜け、気泡またはブルームを形成している経路とした。ガスみちのサイズは各スナップショットデータの(1) Fig.2-13 で示した $z = z_{min}$ の断面図においてガス相の占める面積 A を算出し (Fig.2-16 青丸内)、同面積の円径を等価径 d_{ec} として下式の通り算出した。

$$d_{ec} = 2 \left(\frac{A}{\pi} \right)^{1/2} \quad (2-34)$$

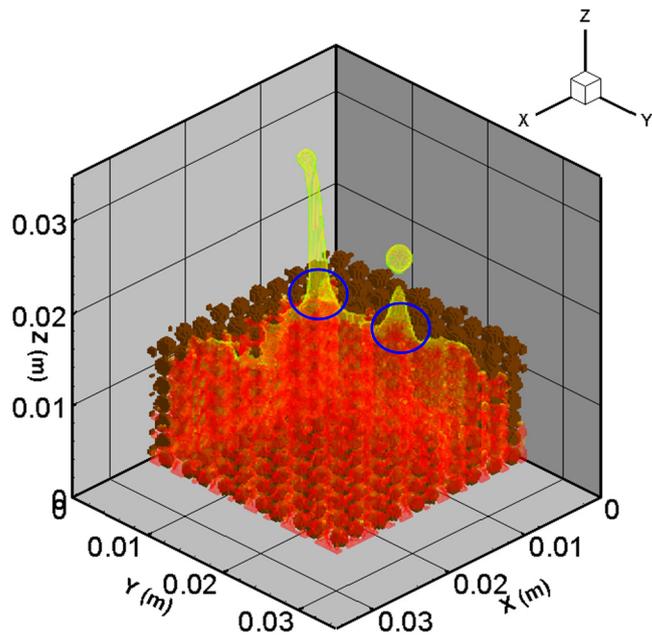
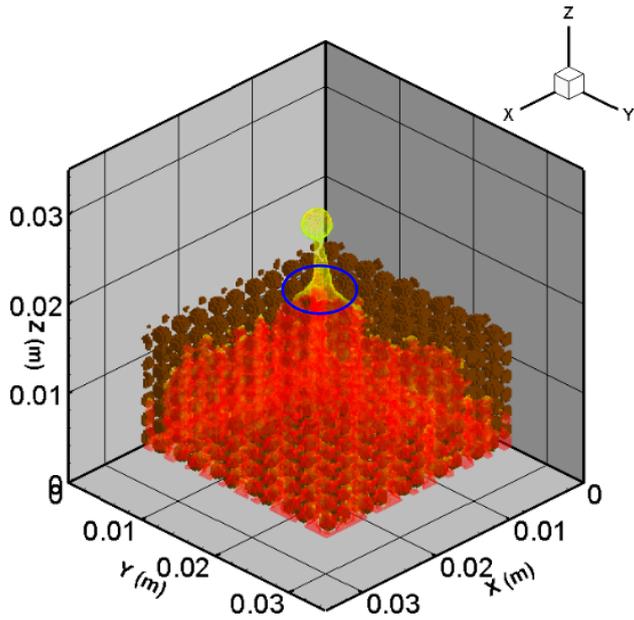
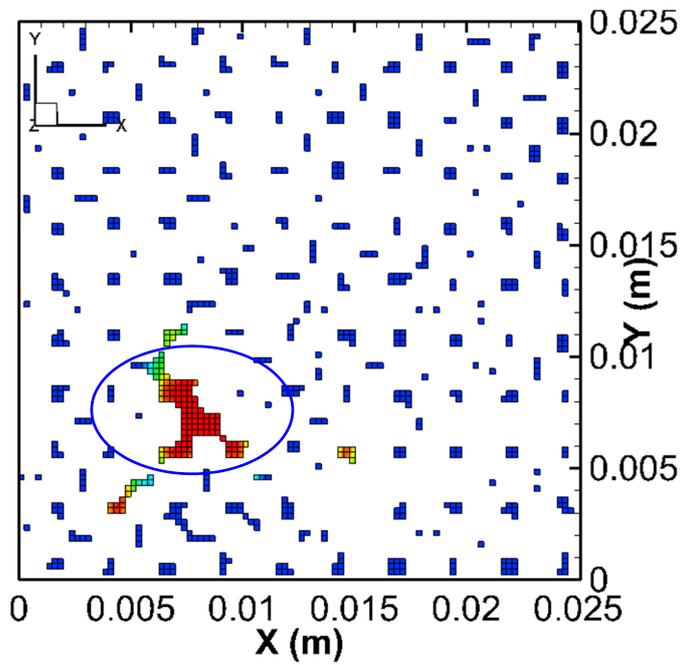


Fig.2-15 Conceptual diagram of gas channel. Blue circles indicates positions of gas channels, that is, area through which gas seeps and forms bubble or plume.



(a)



(b)

Fig.2-16 Conceptual diagram of gas channel and computing its size. Diagram (b) shows cross-sectional view of gas channel at $z = z_{min}$. White color indicates solid phase, blue color indicates liquid phase, red color indicates gas phase, and yellow/green color indicates liquid-gas interface.

スナップショットデータを用いた気泡・ガスみちサイズの解析について Fig.2-17, Fig.2-18 に一例を示す. シミュレーションは, 間隙率 0.35, 粒径 2.0 mm のモデルを用い, 単位面積あたり流量 $2.33 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ で 1.0 sec 分の計算を行った. 固気液各相の物性は Table 2-1, Table 2-4 と同様である.

Fig.2-17 (1)は初期状態のスナップショットであり, 左が 3D , 右が $z = z_{min}$ の水平断面スナップショットである. Fig.2-17 (2)はガスのブレイクスルー直前のスナップショットであり, Fig.2-17 (3) - (12)は以降のスナップショットを並べたものである (6.25×10^{-2} sec 間隔). Fig.2-18 はこの各スナップショットにおいて, (2)項および(3)項前半に述べた定義で判定・算出した, ガスみちサイズおよび気泡サイズをプロットしたものである.

本シミュレーションでは, ガスみちは各スナップショットにおいて 2 本形成されており, 気泡放出は Fig.2-17 (6), (8) - (11)で起こっていると判定された (Fig.2-17 (5)は, $d_b \leq 2\Delta x$ となったため排除). Fig.2-18 (a)は, シミュレーション時間内に形成された 2 本のガスみちの, サイズの時間変動を示していると言える. ガスみちは Fig.2-17 に見られるように, 気泡を放出せずプルームを形成しているものも含む. 一方, Fig.2-18(b)は各スナップショットにおいて, 分離している気泡のサイズとそれを放出したガスみちのサイズの組み合わせをプロットしている. 即ち, Fig.2-17 (6), (8) - (11)の 5 つの気泡とそれを放出しているガスみちについてのプロットとなる.

本研究では以上の手法で, ガスみち・気泡形成シミュレーションの結果を解析している.

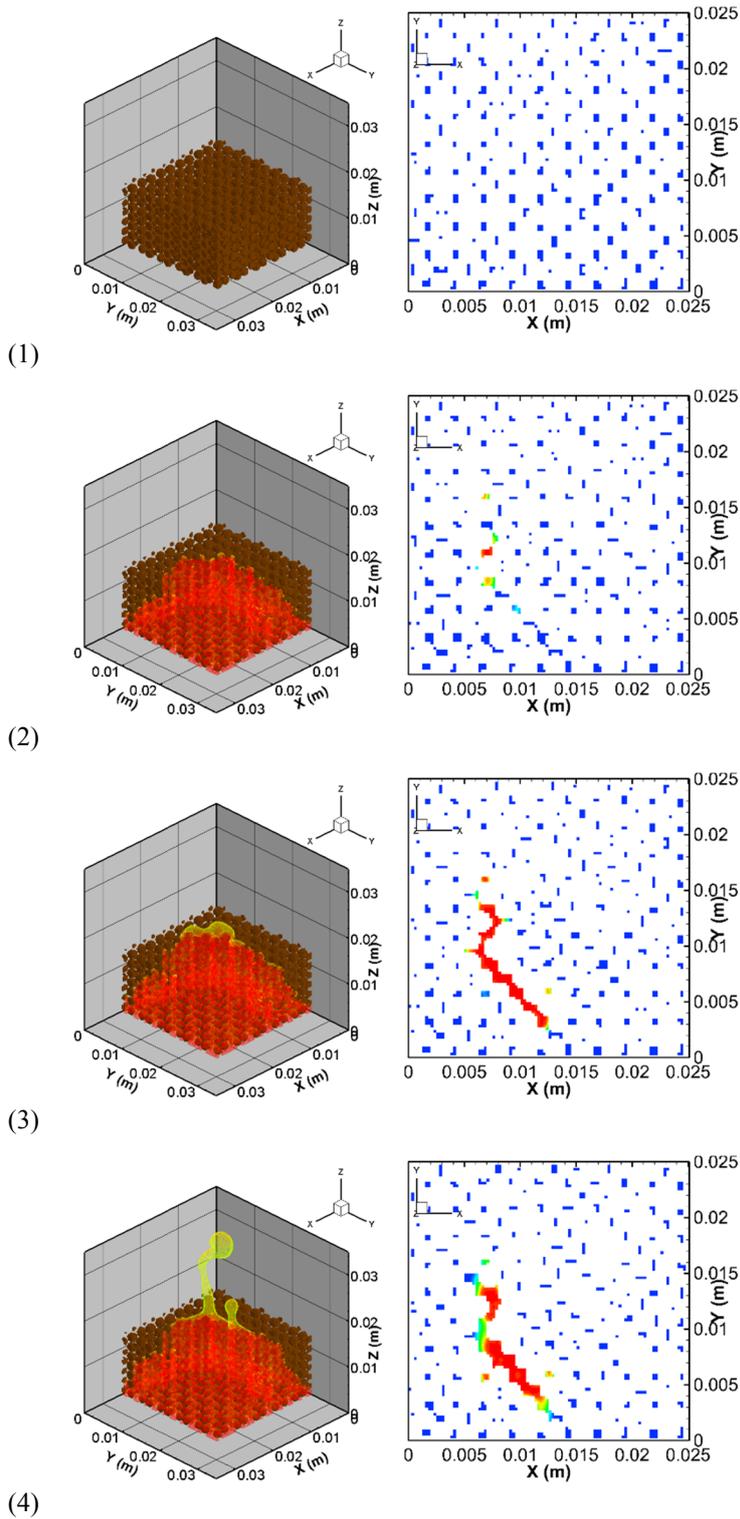
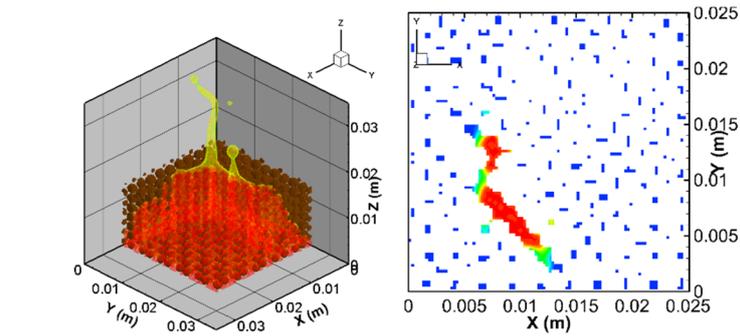
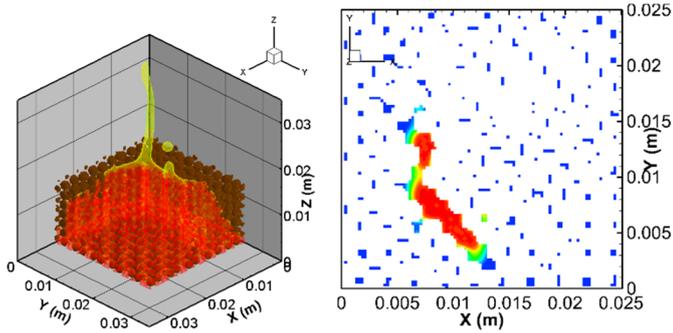


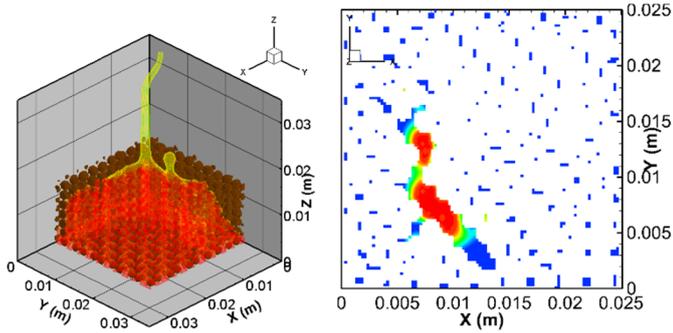
Fig.2-17 Example of snapshot series of (right) 3D view and (left) cross-sectional view of gas channel at $z = z_{smin}$. (1) shows the initial state, (2) shows the snapshots just prior to breakthrough of gas and (3) - (12) show snapshots series after (2) at intervals of 6.25×10^{-2} sec. (Continued.)



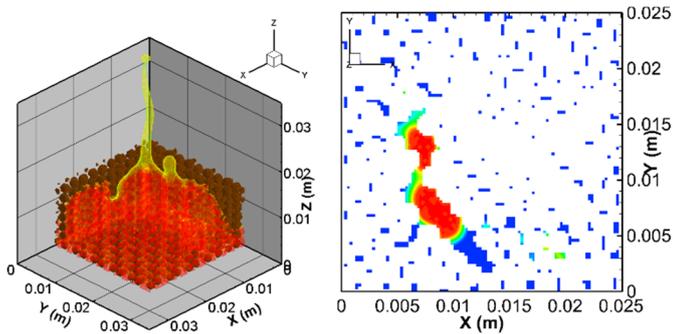
(5)



(6)

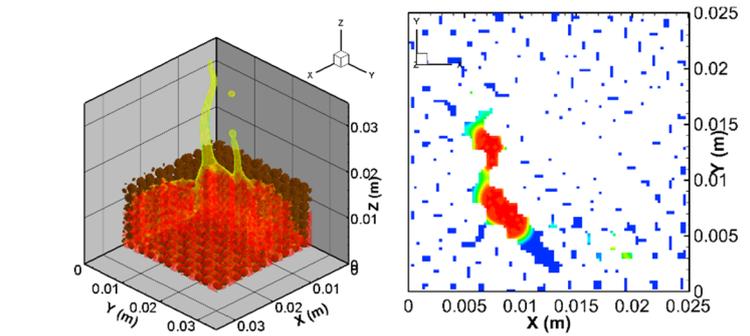


(7)

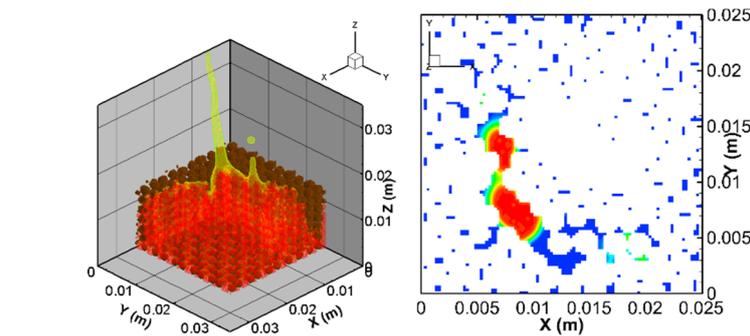


(8)

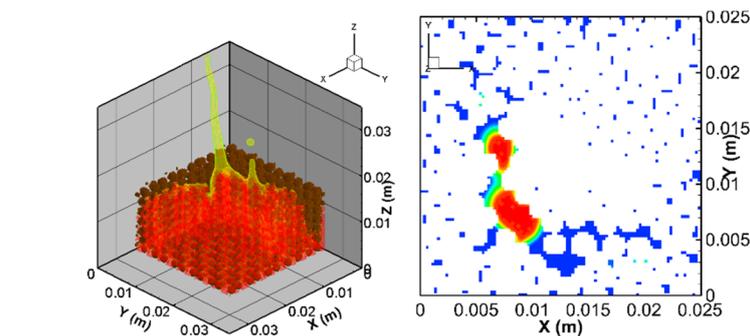
Fig.2-17 (Contd.) Example of snapshot series of (right) 3D view and (left) cross-sectional view of gas channel at $z = z_{smin}$. (1) shows the initial state, (2) shows the snapshots just prior to breakthrough of gas and (3) - (12) show snapshots series after (2) at intervals of 6.25×10^{-2} sec. (Contd.)



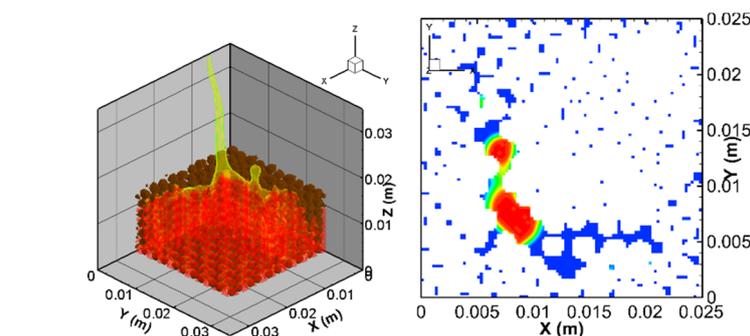
(9)



(10)



(11)



(12)

Fig.2-17 (Contd.) Example of snapshot series of (right) 3D view and (left) cross-sectional view of gas channel at $z = z_{smin}$. (1) shows the initial state, (2) shows the snapshots just prior to breakthrough of gas and (3) - (12) show snapshots series after (2) at intervals of 6.25×10^{-2} sec.

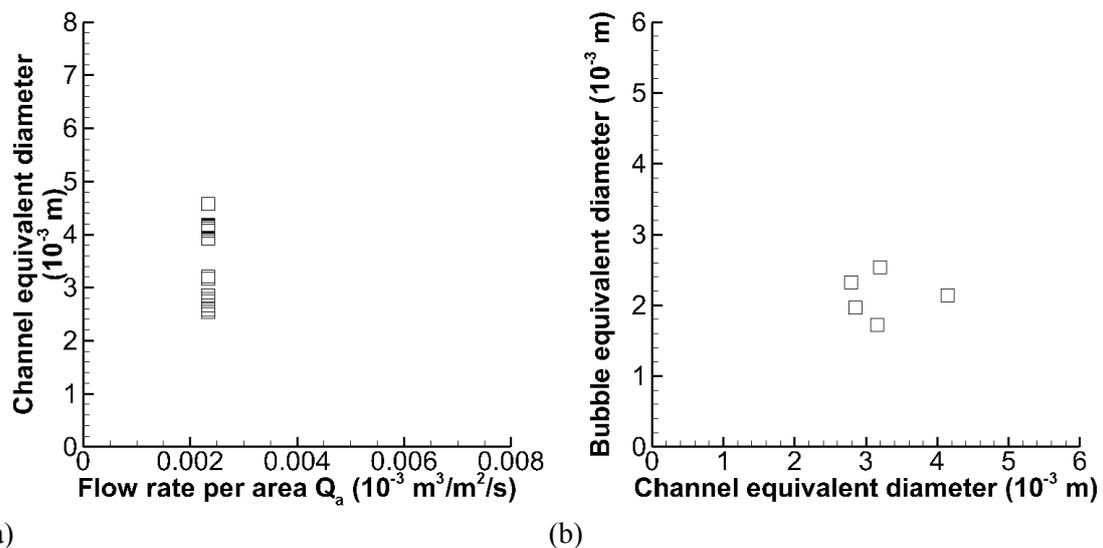


Fig.2-18 Example of analysis of bubble forming simulation. (a) Simulated channel equivalent diameter vs. flow rate per area and (b) simulated bubble equivalent diameter vs. channel equivalent diameter.

(4) ガスみちあたりの流量算出

本シミュレーションでは砂層底面に一定の単位面積あたり流量 ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$) を与えており、領域面積に対する流量 Q_a (m^3/s) が求められる。この流量 Q_a を(3)で判定したガスみちの本数で割ってガスみちあたりの流量 Q_c (m^3/s) とした。この時、各ガスみちの断面積の大小は考慮しないものとする。

(5)円形オリフィス理論との比較

単一円形オリフィスからの気泡形成では体積流量 Q によって、界面張力と浮力の釣り合いに支配される準定常状態から、慣性力が支配的になる動的状態に変化する²⁻²³⁾。この準定常状態から動的状態にレジーム変化を起こす遷移流量 Q_{st} 、および各レジームにおける気泡径 D_s 、 D_l はオリフィス径 d_o に対し下式で表される²⁻²³⁾。

$$\begin{aligned}
Q_{st} &= \pi \left(\frac{1}{48g^2k^3} \right)^{1/6} \left(\frac{d_o\sigma}{\rho_L} \right)^{5/6} \\
D_s &= \left(\frac{6d_o\sigma}{\rho_L g} \right)^{1/3} \\
D_i &= \left(\frac{72Q^2k}{\pi^2 g} \right)^{1/5}
\end{aligned} \tag{2-35}$$

ここで k は付加質量係数であり，円形オリフィスから形成される気泡に対しては $k = 11/16$ を用いる²⁻²⁴⁾．式(2-35)より水深数百 m 以下の沿岸域における温度・圧力条件下では，形成される気泡サイズが最も影響を受けるのは，オリフィス径または流量であると考えられる．本研究ではこれを踏まえて，シミュレーションの結果を解析する．

2.5.2 領域サイズ依存性

本項では本研究に用いた計算モデルにおいて，水平領域サイズ L_D がシミュレーション結果に与える影響を把握するための計算を行った．計算では粒径 $d_p = 2.0$ (mm)，間隙率 0.35 の層に対し，格子サイズ Δx を粒径 0.125 倍 (0.25 mm)，鉛直領域サイズを粒径 18.75 倍 (3.75 cm)，層厚 H を粒径 7 倍 (1.4 cm) に固定している．固気液各相の物性は Table 2-1 および Table 2-4 と同様とする．また計算パラメタを Table 2-2 に示す．

まず，水平領域サイズ L_D を粒径の 7.5 倍 (1.5 cm)，10 倍 (2.0 cm)，12.5 倍 (2.5 cm)，15 倍 (3 cm) とした各ケースに，単位面積あたり流量 $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ で 1 sec 分の計算を行った時の，ガスみち等価径の解析結果を Fig.2-19 に示す．プロットは各ケースにおいて形成された 1 本もしくは複数のガスみちの，サイズのばらつき・変動を示す．また，Fig.2-20 に各ケースにおけるガスみち断面図を示す．

水平領域サイズ $L_D = 10 d_p$ のケースでは，領域のほぼ対角線上に一つのガスみちが形成され，サイズ変動が大きく見られた．これは，小さい領域においてガスみちが分裂し

得なかったためと考えられる。一方、 $L_D = 12.5 d_p$ と $L_D = 15 d_p$ のケースでは、共に複数のガスみちが形成され変動幅も同様であった。 $L_D = 7.5 d_p$ のケースでは、他ケースに比較してガスみちの形成が起こりにくく、DEM 壁境界の影響が生じていると見られる。また、 $L_D = 10 d_p$ と同様、領域のほぼ対角線上にガスみち形成が見られる。

次に、 $L_D = 7.5 d_p$, $10 d_p$, $12.5 d_p$ の各ケースにおいて単位面積あたり流量 $2.33 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ で 1 sec 分の計算を行った時の、ガスみち等価径の解析結果を Fig.2-21 に、各ケースにおけるガスみち断面図を Fig.2-22 に示す。Fig.2-21 では、各ケースにおいて形成されるガスみちサイズの幅に大きな違いは見られない。しかしながら Fig.2-22 を見ると、 $L_D = 7.5 d_p$, $10 d_p$ のケースでは領域のほぼ対角線上に一つのガスみちが形成されており、境界の影響がぬぐいきれないものと考えられる。

以上の結果を踏まえ、本研究のパラメタスタディでは、条件に応じて複数のガスみちを形成できるサイズ、かつ計算コストを考慮し、粒径 d_p の 12.5 倍の領域サイズ L_D を用いた。

Table2-5 Simulation parameters for different domain area.

Parameters	
Grain diameter d_p (m)	2.0×10^{-3}
Porosity of sand layer ϕ	0.35
Layer thickness H (m)	1.4×10^{-2}
Vertical domain length (m)	3.75×10^{-2}
Node spacing Δx (m)	2.5×10^{-4}
Mock acoustic velocity c_0 (m/s)	5.0
Time step size Δt (sec)	5.0×10^{-5}

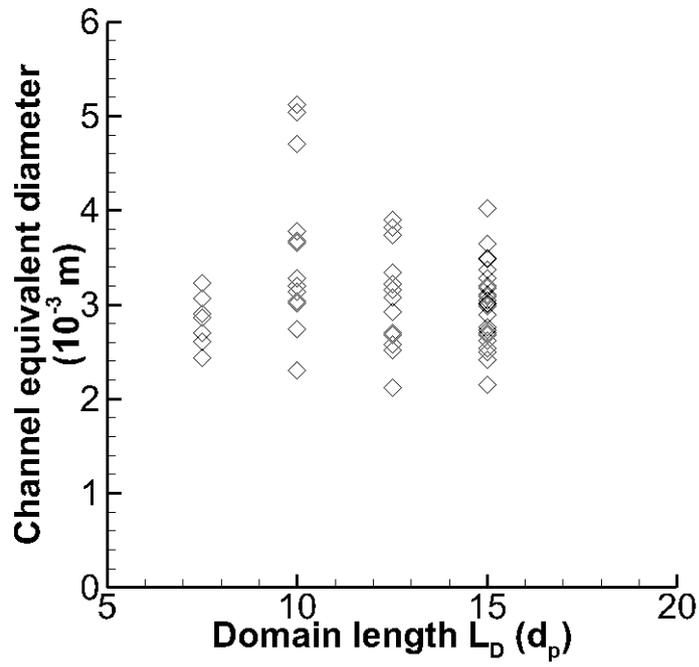


Fig.2-19 Simulated channel equivalent diameter for different domain area. Grain diameter d_p is 2.0 mm, porosity of sand layer ϕ is 0.35, and flow per area Q_a is 2.67×10^{-3} m³/m²/s.

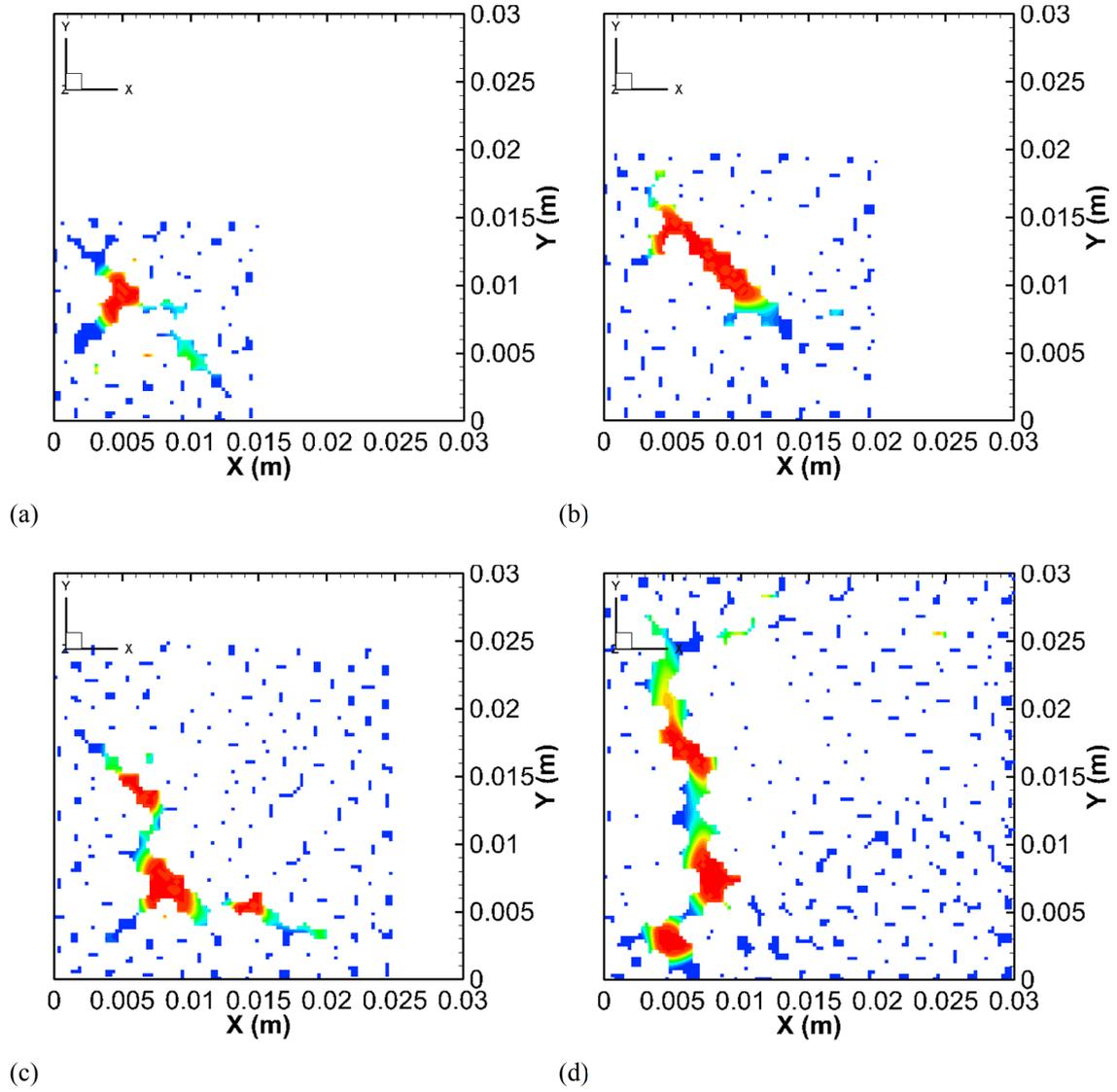


Fig.2-20 Cross-sectional view of gas channel at $z = z_{min}$ for different domain area. $L_D =$ (a) $7.5d_p$, (b) $10 d_p$, (c) $12.5d_p$, (d) $15d_p$. Grain diameter d_p is 2.0 mm, porosity of sand layer ϕ is 0.35, and flow per area Q_a is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Thickness of sand layer is $7d_p$ (1.4 cm).

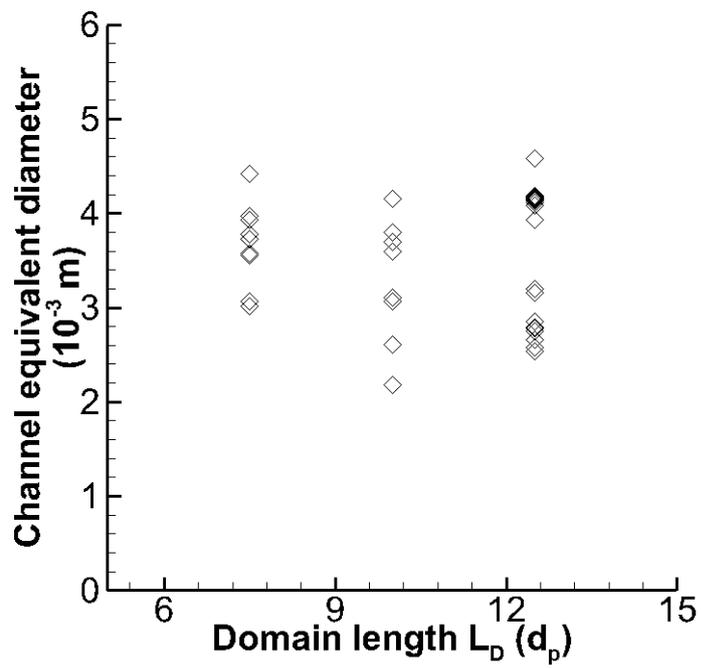
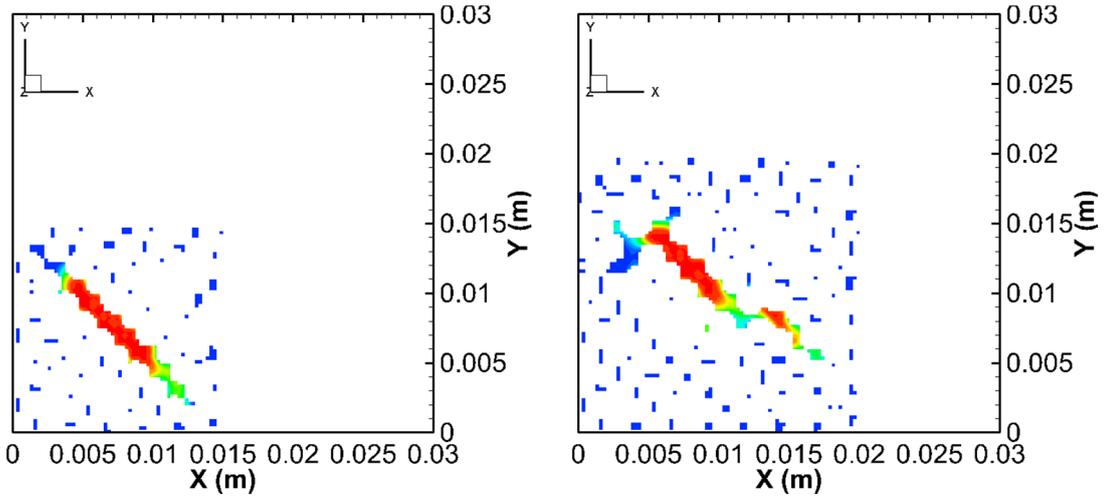
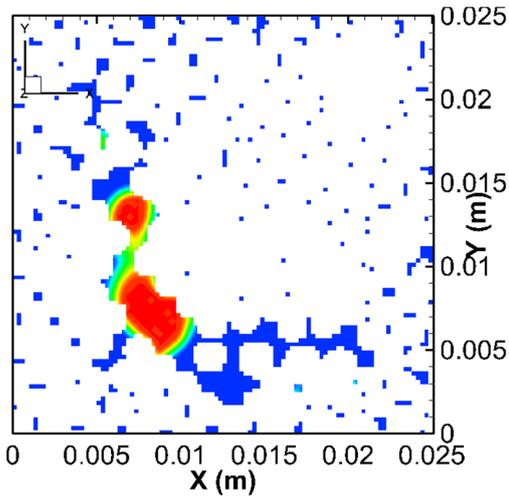


Fig.2-21 Simulated channel equivalent diameter for different domain area. Grain diameter d_p is 2.0 mm, porosity of sand layer ϕ is 0.35, and flow per area Q_a is 2.33×10^{-6} m³/m²/s.



(a)

(b)



(c)

Fig.2-22 Cross-sectional view of gas channel at $z = z_{min}$ for different domain area. $L_D =$ (a) $7.5 d_p$, (b) $10 d_p$, and (c) $12.5 d_p$. Grain diameter d_p is 2.0 mm, porosity of sand layer ϕ is 0.35, and flow per area Q_a is $2.33 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Thickness of sand layer is $7d_p$ (1.4 cm).

【参考文献】

- 2-1) McNamara G., Zanetti, G., 1988. Use of the Boltzmann equation to simulate lattice-gas automata, *Phys. Rev. Lett.* 61, 2332-2335.
- 2-2) Cundall, P.A., Strack, O.D.L., 1979. A discrete numerical model for granular assemblies. *Géotechnique* 29(1), 47-65.
- 2-3) Gunstensen, A.K., Rothman, D.H., Zaleski, S., Zanetti, G., 1991. Lattice Boltzmann model of immiscible fluids, *Phys. Rev. A* 43(8), 4320-4327.
- 2-4) Shan, X., Chen, H., 1993. Lattice Boltzmann model for simulating flows with multiple phases and components, *Phys. Rev. E* 47(3), 1815-1819.
- 2-5) Swift, M.R., Orlandini, E., Osborn, W.R., Yeomans, J.M., 1996. Lattice Boltzmann simulations of liquid-gas and binary fluid systems, *Phys. Rev. E* 54(5), 5041-5052.
- 2-6) He, X., Chen, S., Zhang, R., 1999. A Lattice Boltzmann Scheme for Incompressible Multiphase Flow and Its Application in Simulation of Rayleigh-Taylor Instability. *J. Comput. Phys.* 152, 642-663.
- 2-7) Huang, H., Huang, J.-J., Lu, X.-Y., 2014. A mass-conserving axisymmetric multiphase lattice Boltzmann method and its application in simulation of bubble rising. *J. Comput. Phys.* 269, 386-402.
- 2-8) Inamuro, T., Ogata, T., Tajima, S., Konishi, N., 2004. A lattice Boltzmann method for incompressible two-phase flows with large density differences. *J. Comput. Phys.* 198, 628-644.
- 2-9) Huang, H., Thorne, Jr., D.T., Schaap, M.G., Sukop, M.C., 2007. Proposed approximation for contact angles in Shan-and-Chen-type multicomponent multiphase lattice Boltzmann models. *Phys. Rev. E* 76, 066701.
- 2-10) Bouzidi, M., Firdaouss, M., Lallemand, P., 2001. Momentum transfer of a Boltzmann-lattice fluid with boundaries. *Phys. Fluids* 13, 3452.

- 2-11) Abe, S., Place, D., Mora, P., 2004, A parallel implementation of the lattice solid model for the simulation of rock mechanics and earthquake dynamics. *Pure. Appl. Geophys.*, 161, 2265-2277. <<https://launchpad.net/esys-particle/>> (accessed June 01, 2016).
- 2-12) Cook, B., Noble, D., Preece, D., Williams, J., 2000: Direct simulation of particle-laden fluids. In: Girard, L., Breeds, D. (eds.), *Pacific Rocks*. 279-286, Balkema, Rotterdam.
- 2-13) Batchelor, G.K., 1967. *An Introduction to Fluid Dynamics*. Cambridge University Press. ISBN 0-521-66396-2.
- 2-14) Clift, R., Grace, J.R., Weber, M.E. 1978. *Bubbles, Drops and Particles*. Academic Press. New York.
- 2-15) Moore, D.W., 1965. The velocity of rise of distorted gas bubbles in a liquid of small viscosity. *J. Fluid Mech.* 23, 749–766.
- 2-16) Sorai, M., Fujii, T., Kano, Y., Uehara, S., Honda, K., Experimental study of sealing performance: Effects of particle size and particle-packing state on threshold pressure of sintered compacts. *J. Geophys. Res. Solid Earth* 119, 5482-5496, 2014.
- 2-17) Bachu, S., Bennion, D.B., 2009. Interfacial tension between CO₂, freshwater, and brine in the range of pressure from (2 to 27) MPa, temperature from (20 to 125) °C, and water salinity from (0 to 334 000) mgL⁻¹. *J. Chem. Eng. Data*, 54, 765-775.
- 2-18) Sarmadivaleh, M, Al-Yaseri, A.Z., Iglauer, S., Influence of temperature and pressure on quartz-water-CO₂ contact angle and CO₂-water interfacial tension. *J. Colloid Interf. Sci.* 441, 59-64, 2015.
- 2-19) Thomas, L.K., Katz, D.L., Tek, M.R., 1968. Threshold Pressure Phenomena in Porous Media. *SPE Journal* 8, 174-184.
- 2-20) 三堀啓介, 2009. 微小スケールシミュレーションによる砂層中流砂に関する研究. H20 年度東京大学新領域創成科学研究科修士論文.

- 2-21) Li, H., Fang, H., Lin Z. et. al., 2004. Lattice Boltzmann simulation on particle suspensions in a two-dimensional symmetric stenotic artery. *PHYSICAL REVIEW*, E69, 031919.
- 2-22) 河田諒, 2013. 砂状堆積物から漏出する気泡サイズ決定メカニズムに関する研究. H24 年度東京大学工学部卒業論文.
- 2-23) Loimer, T., Machu, G., Schaflinger, U., 2004. Inviscid bubble formation on porous plates and sieve plates. *Chem. Eng. Sci.* 59, 809-818.
- 2-24) Davidson, J.F., Schüler, B.O.G., 1960. Bubble formation at an orifice in an inviscid liquid. *Trans. Inst. Chem. Eng.* 38, 335-342.

3. 未固結層における気泡形成シミュレーション

本章では第 2 章で構築した固気液三相流動シミュレータを用いてシミュレーションを行い、海底堆積物のごく表面に大きなガス溜りができ、その上に薄く砂礫層が残っている状態を想定した、未固結層におけるガスみち・気泡形成に固気液三相流動の与える影響を解析する。まず、3.1 節では固結層および未固結層における気泡形成挙動についてシミュレーションを行い、その差異を検討する。続いて 3.2 節では流量・間隙率・粒径の各パラメタに関し、気泡形成シミュレーションのパラメタスタディを行った。今回はあくまで特別な領域に関する計算ではあるものの、これらの結果を踏まえ 3.3 節にて、未固結層の気泡形成メカニズムについて論じる。

3.1. 固結層と未固結層における気泡形成挙動の差異

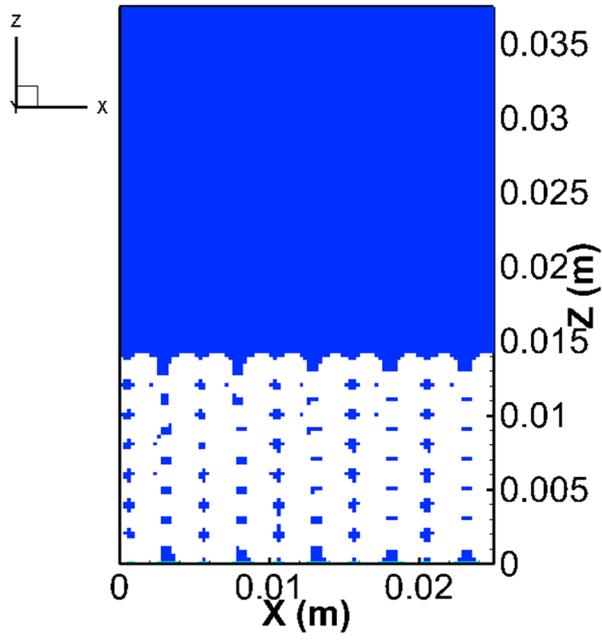
本節では初期粒子充填やガス流量を同条件とした、固結層および未固結層における気泡形成シミュレーションを行い、その挙動の差異から、粒子未固結による固気液三相流動が気泡形成に与える影響を解析する。シミュレーションには、海底堆積物中のガス溜まり上に薄い砂礫層が乗っているというケースを想定した計算モデルを使用する。モデルは沿岸の海底堆積物表面を想定し、粒径 2.0 mm で間隙率 0.35 と 0.43 の層を用いた。また、固体粒子層厚、水平および鉛直計算領域サイズに関してはそれぞれ粒径 7 倍、12.5 倍および 18.75 倍の値を用いた。格子サイズ Δx は粒径 0.125 倍、模擬音速 c_0 は 5.0 m/s とし、時間刻み幅 $\Delta t = \Delta x / c_0$ で与えている。流体には温度 10 °C ・圧力 2 MPa の条件下における水と CO₂、固体粒子には石英・長石を主要成分とする一般的な砂粒子を想定した。Table 3-1 にシミュレーションで用いた各物性値を、Table 3-2 に各計算パラメタを示す。また、Fig.3-1 に各間隙率層の初期状態の断面図を載せる。

Table 3-1 Physical properties for bubble forming simulation.

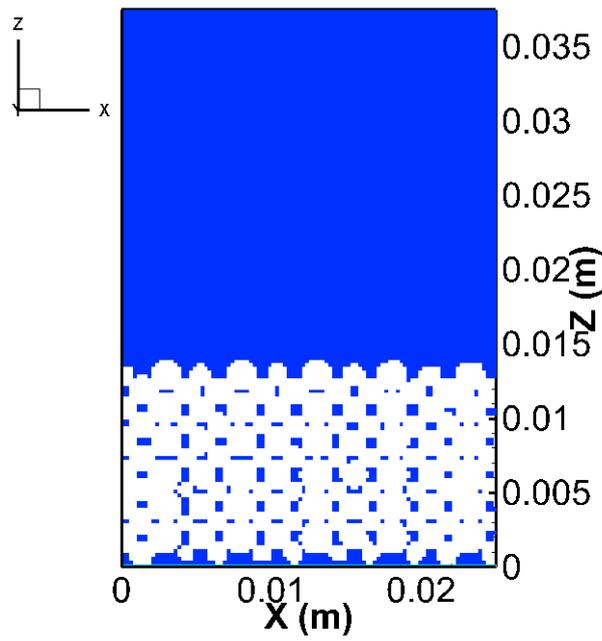
Properties	
Density of liquid ρ_L (kg/m ³)	1.00×10^3
Density of gas ρ_G (kg/m ³)	4.30×10^1
Density of solid ρ_S (kg/m ³)	2.40×10^3
Viscosity of liquid μ_L (Pa-s)	1.00×10^{-3}
Viscosity of gas μ_G (Pa-s)	1.00×10^{-5}
Surface tension coefficient σ_{LG} (N/m)	7.28×10^{-2}
Contact angle θ (°)	26.0
Young modulus of solid (GPa)	73.1
Poisson ratio of solid	0.17
Dynamic friction coefficient of solid	0.1
Static friction coefficient of solid	0.6

Table 3-2 Parameters for bubble forming simulation.

Parameters	
Grain diameter d_p (m)	2.0×10^{-3}
Porosity of sand layer ϕ	0.35, 0.43
Layer thickness H (m)	1.4×10^{-2}
Horizontal domain length L_D (m)	2.5×10^{-2}
Vertical domain length (m)	3.75×10^{-2}
Node spacing Δx (m)	2.5×10^{-4}
Mock acoustic velocity c_0 (m/s)	5.0
Time step size Δt (sec)	5.0×10^{-5}
Flow rate per area Q_a (m ³ /m ² /s)	2.67×10^{-3}



(a)



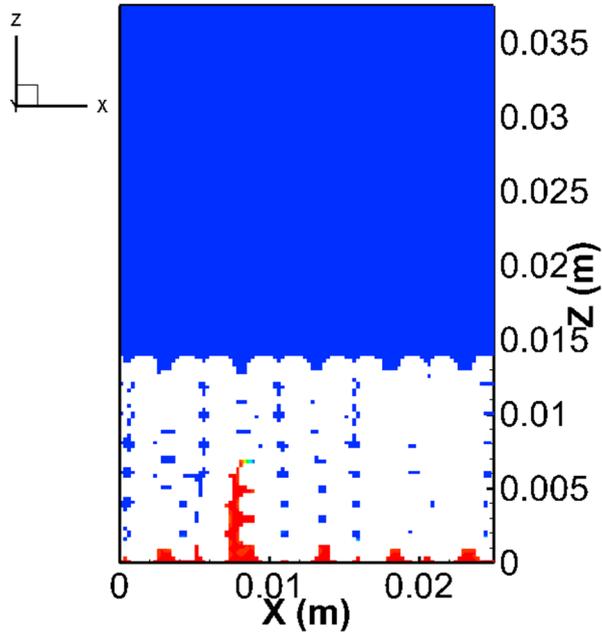
(b)

Fig.3-1 Initial package of sand grains. Grain diameter is 2.0 mm and the porosity is (a) 0.35 and (b) 0.43. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

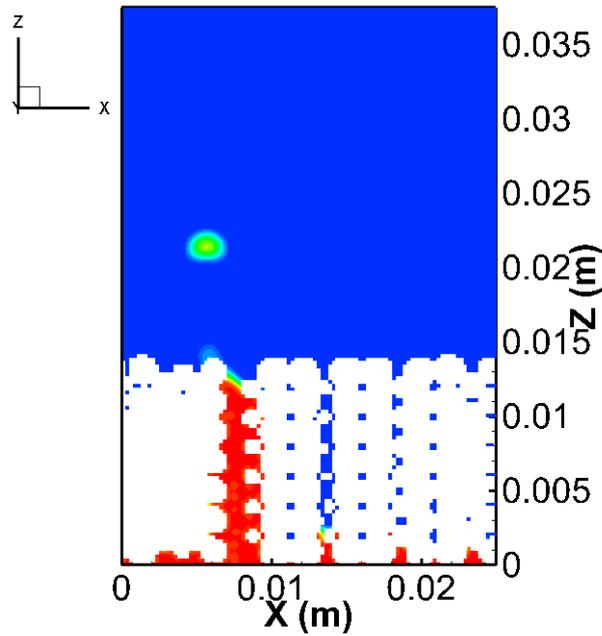
まず、未固結層に、単位面積あたり流量 $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ でガスを流入させた結果を Fig.3-2 - Fig.3-7 に示す。間隙率がいずれの層においても、流入したガスはやがてガスみちを形成し、そこから気泡の放出が起こった。未固結層の場合、流入ガスの圧力が固体粒子の移動に十分なレベルに高まると、固体粒子の再配置により、初期状態よりガスの通りやすいガスみちが形成された。

Fig.3-8 にガスプルームが粒子層に行き当たり押しのけようとしている際の圧力差を示す。最も圧力差が高い位置で、約 300 Pa となった。この圧力差を、Fig.3-1 の状態で粒子を固定した層のガス端に与えた計算結果が、Fig.3-9 および Fig.3-10 である。間隙率 0.35 のケースでは、下端から侵入したガスは途中まで選択的な経路で上昇したが、途中から上昇が止まった。一方、間隙率 0.43 のケースでは、ガスは層上端まで達し気泡を形成した。

Fig.3-11 および Fig.3-12 に、未固結層および固結層における、ガス相のみの三次元分布を示す。未固結層では、形成されたガスみちにガスが集中し水中へ到達するが、固結層では、ガスはスロートでの毛管圧を超えられる間隙だけを進んでいく。スロート径 d_{th} は、幾何学的にスロートに収まる球の最大径で近似すると、たとえば単一粒径 d_p の最密充填（間隙率 0.26）において $d_{th} = 0.154d_p - 0.414d_p$ となる³⁻¹⁾。これにしたがえば、球粒子の粒径が 2.0 mm の時 $d_{th} = 0.31 - 0.82$ (mm)であり、この時 Table 3-1 の物性に基づいた毛管圧は 849 - 316 Pa となる。最密充填の層でガスのブレイクスルーを起こすスレッシュヨルド圧は、最小スロート径の毛管圧となるが³⁻¹⁾、間隙率 0.35 や 0.43 のケースでは、充填状態により大きいスロートが繋がり、低いスレッシュヨルド圧となる経路が存在する。本シミュレーションの結果では、未固結層であればガスみちが形成され抜けていく圧力（300 Pa）に対し、間隙率 0.43 のケースではガスのブレイクスルーが起こったが、間隙率 0.35 のケースではブレイクスルーが起きず、層中に留まることとなった。

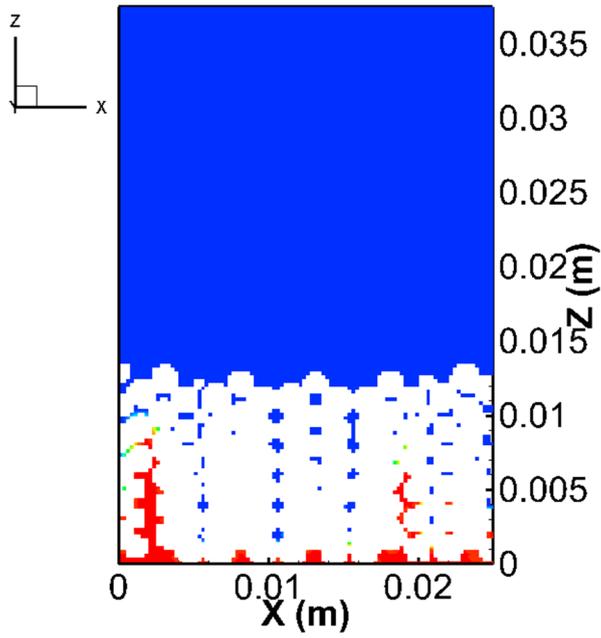


(a)

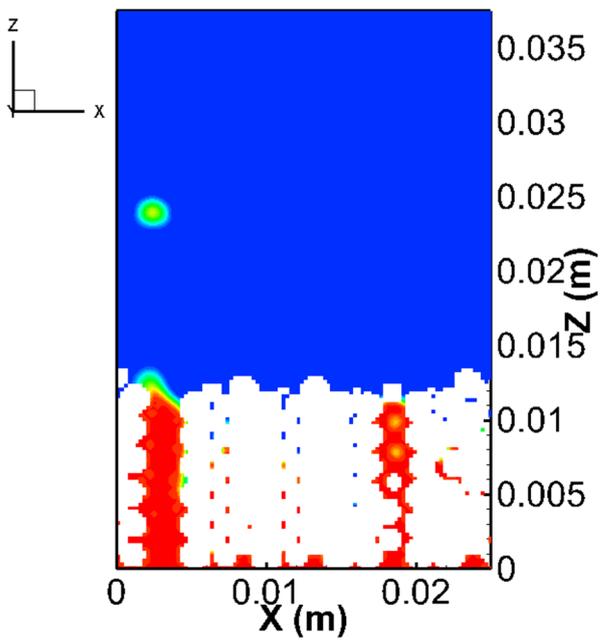


(b)

Fig.3-2 Cross-sectional snapshots of gas phase intrusion into unconsolidated layer, started from Fig.3-1(a). White area indicates solid phase, blue area indicates liquid phase, red area indicates gas phase, and yellow/green area indicates interface of liquid and gas, respectively. Grain diameter is 2.0 mm, the porosity is 0.35, and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

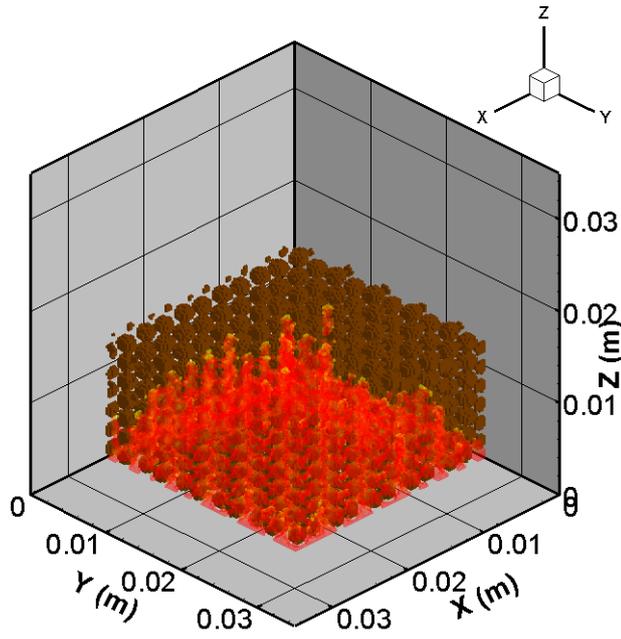


(a)

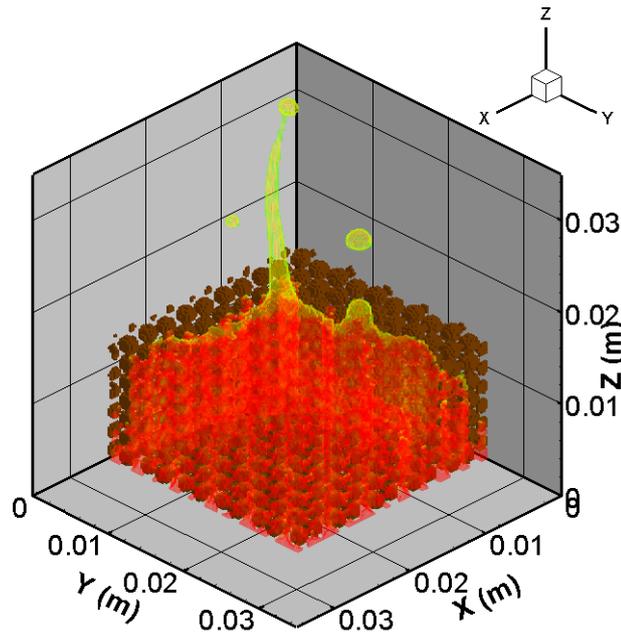


(b)

Fig.3-3 Cross-sectional snapshots of gas phase intrusion into unconsolidated layer, started from Fig.3-1(b). White area indicates solid phase, blue area indicates liquid phase, red area indicates gas phase, and yellow/green area indicates interface of liquid and gas, respectively. Grain diameter is 2.0 mm, the porosity is 0.43, and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

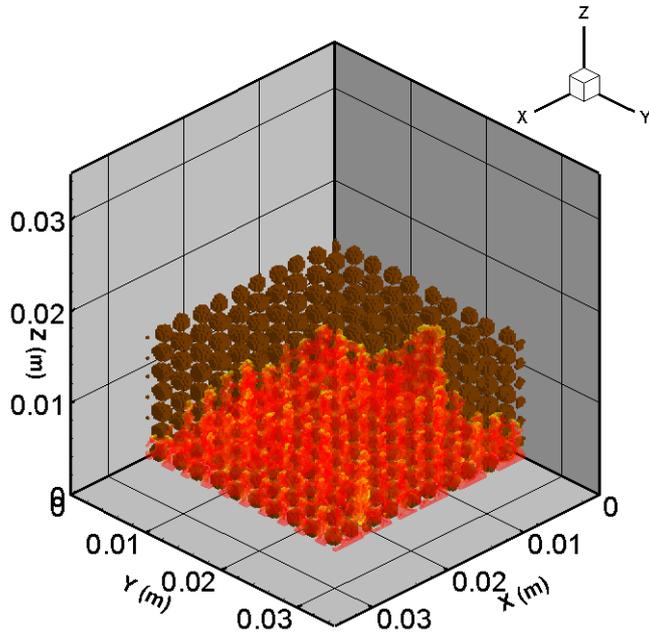


(a)

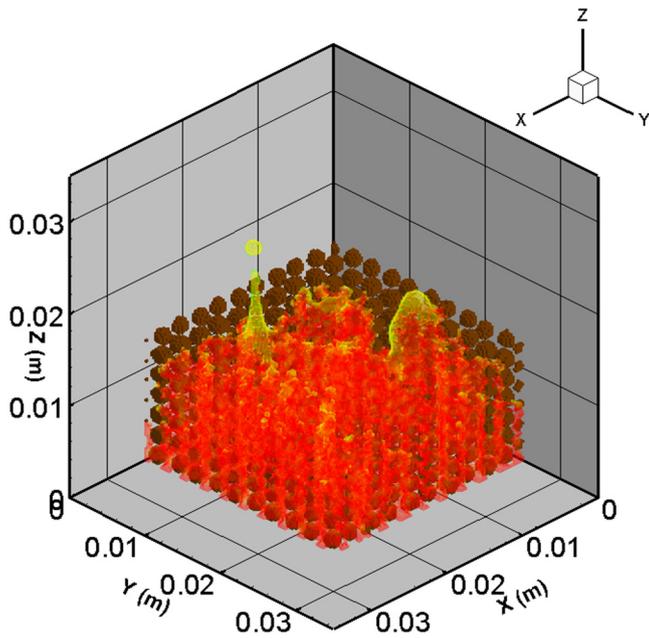


(b)

Fig.3-4 Three-dimensional snapshots of gas phase intrusion and formation of bubble through unconsolidated layer of which porosity is 0.35, (a) at forming gas channel and (b) during formation of bubbles. Grain diameter is 2.0 mm and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

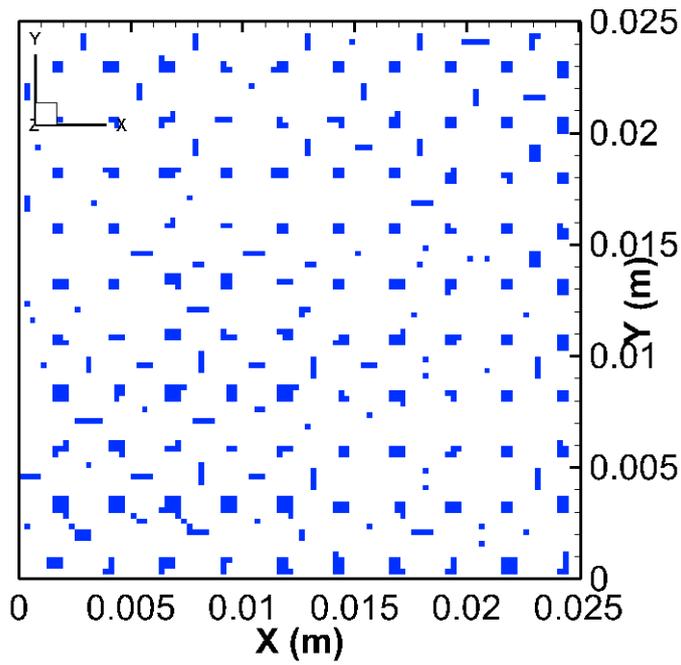


(a)

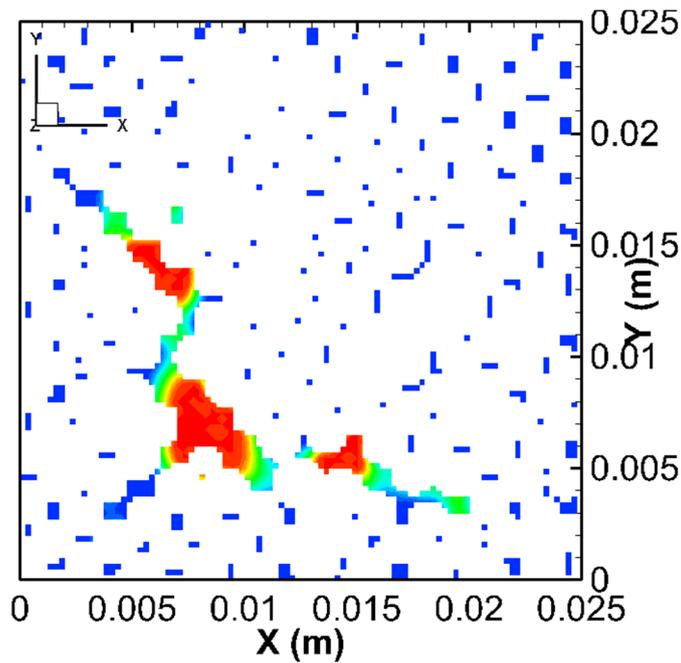


(b)

Fig.3-5 Three-dimensional snapshots of gas phase intrusion and formation of bubble through unconsolidated layer of which porosity is 0.43, (a) at forming gas channel and (b) during formation of bubbles. Grain diameter is 2.0 mm and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

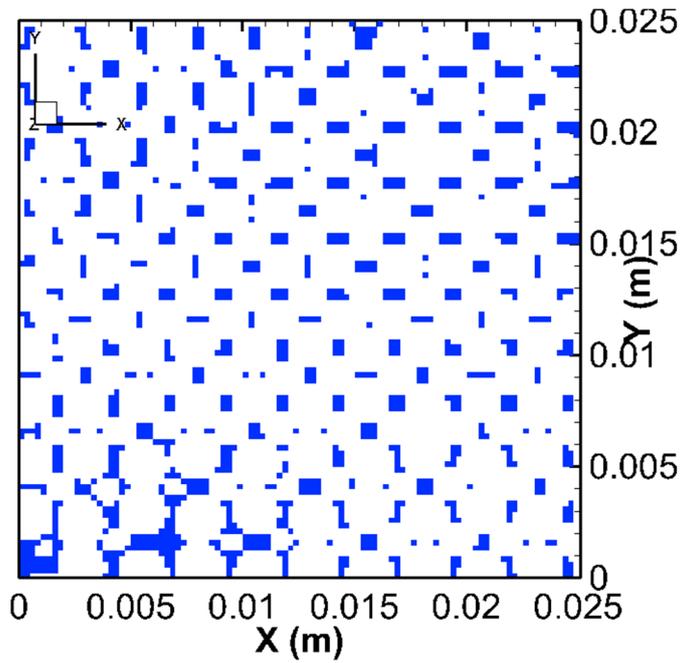


(a)

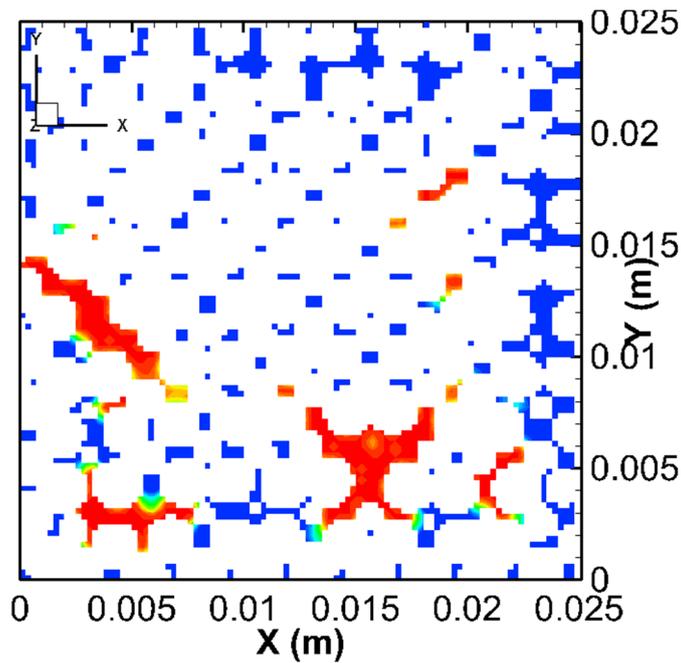


(b)

Fig.3-6 x-y plane snapshots of gas phase intrusion and formation of gas channel in unconsolidated layer of which porosity is 0.35, (a) at initial condition and (b) after gas intrusion. White area indicates solid phase, blue area indicates liquid phase, red area indicates gas phase, and yellow/green area indicates interface of liquid and gas, respectively. Grain diameter is 2.0 mm and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

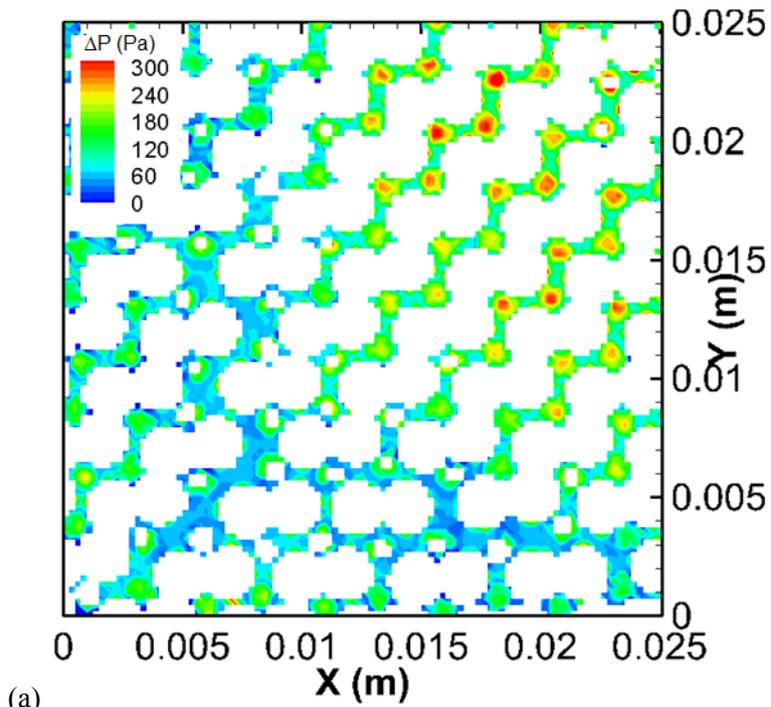


(a)

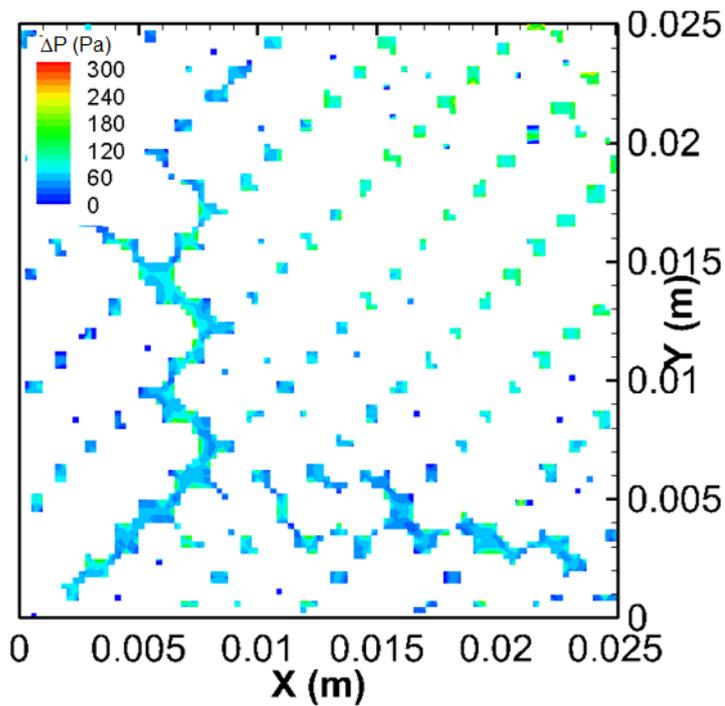


(b)

Fig.3-7 x-y plane snapshots of gas phase intrusion and formation of gas channel in unconsolidated layer of which porosity is 0.43, (a) at initial condition and (b) after gas intrusion. White area indicates solid phase, blue area indicates liquid phase, red area indicates gas phase, and yellow/green area indicates interface of liquid and gas, respectively. Grain diameter is 2.0 mm and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

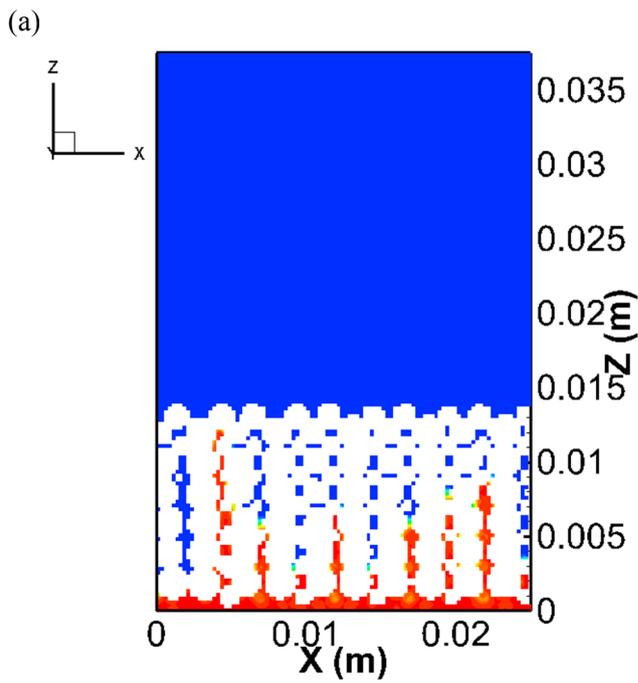
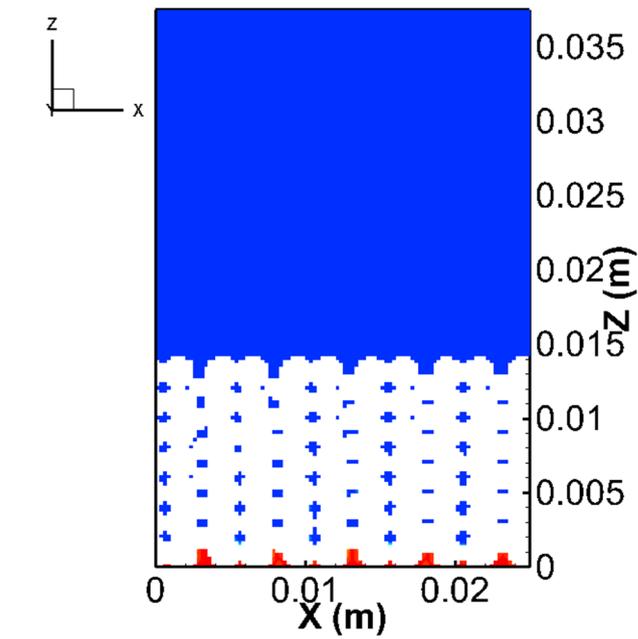


(a)



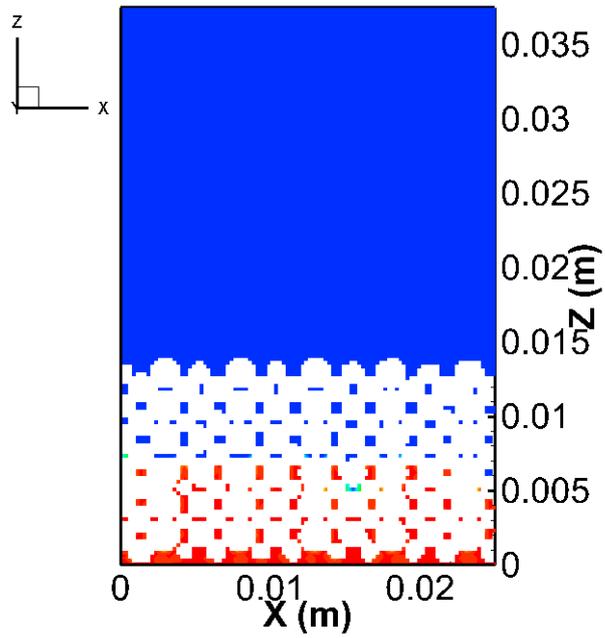
(b)

Fig.3-8 x-y plane snapshots of pressure in unconsolidated layer of which porosity is 0.35. (a) shows the tip of gas phase and (b) shows a x-y plane lying directly on the plane of (a). Grain diameter is 2.0 mm and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

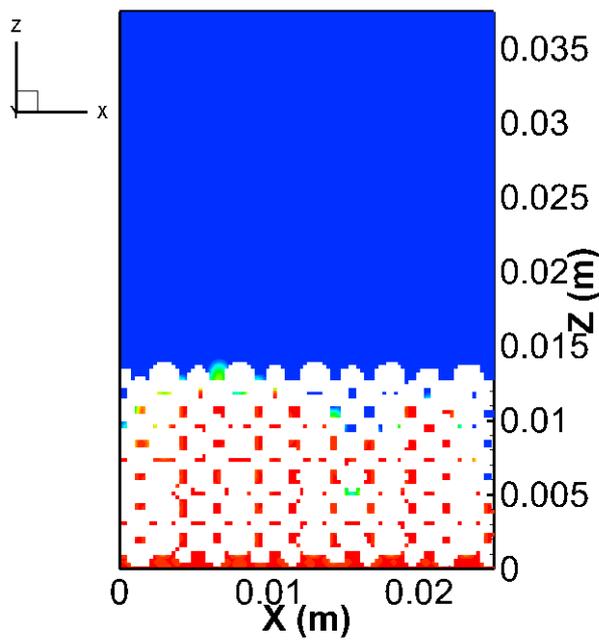


(b)

Fig.3-9 Two different cross-sectional snapshots of gas phase intrusion through consolidated layer, (a) is the same cross-sectional plane in Fig.3-1(a), and (b) is another plane where gas intrudes furthest. Gas migration stopped after reach narrow throat. White area indicates solid phase, blue area indicates liquid phase, red area indicates gas phase, and yellow/green area indicates interface of liquid and gas, respectively. Grain diameter is 2.0 mm, the porosity is 0.35, and the inlet pressure is 300 Pa. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

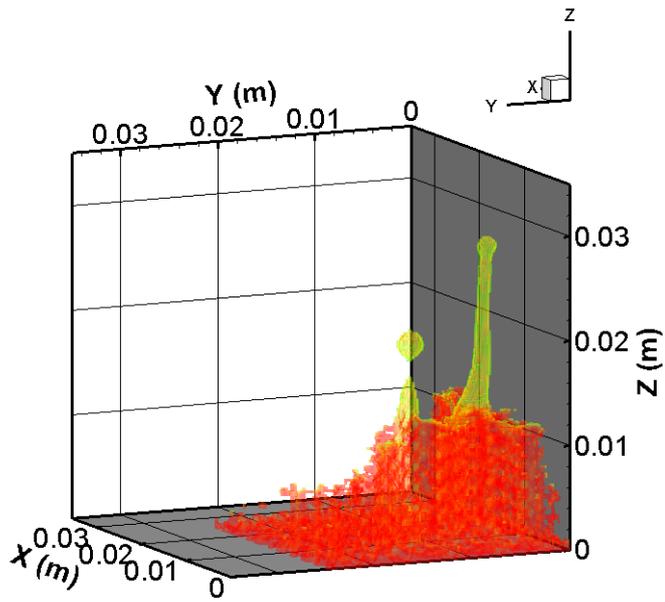


(a)

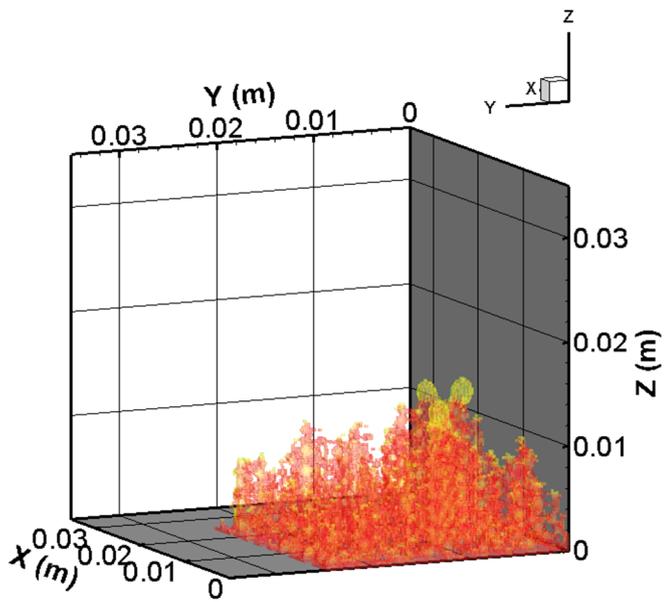


(b)

Fig.3-10 Two different timing of cross-sectional snapshots of gas phase intrusion through consolidated layer of Fig.3-1(b). Gas migrates upward conquering capillary pressure. White area indicates solid phase, blue area indicates liquid phase, red area indicates gas phase, and yellow/green area indicates interface of liquid and gas, respectively. Grain diameter is 2.0 mm, the porosity is 0.43, and the inlet pressure is 300 Pa. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

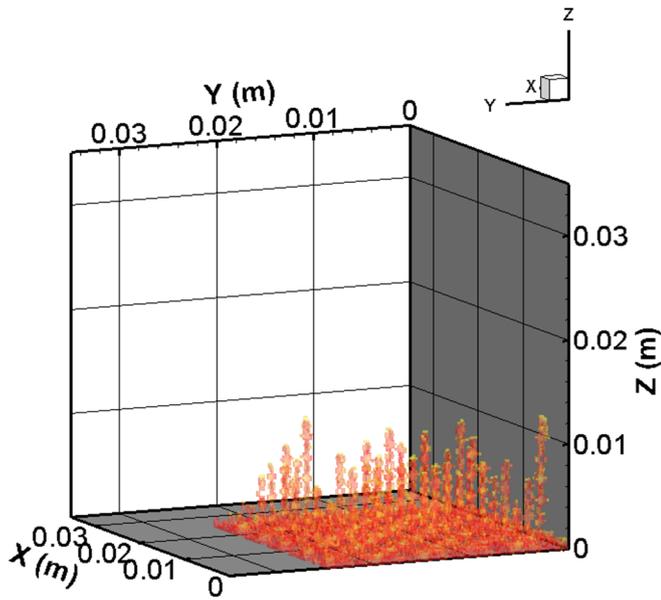


(a)

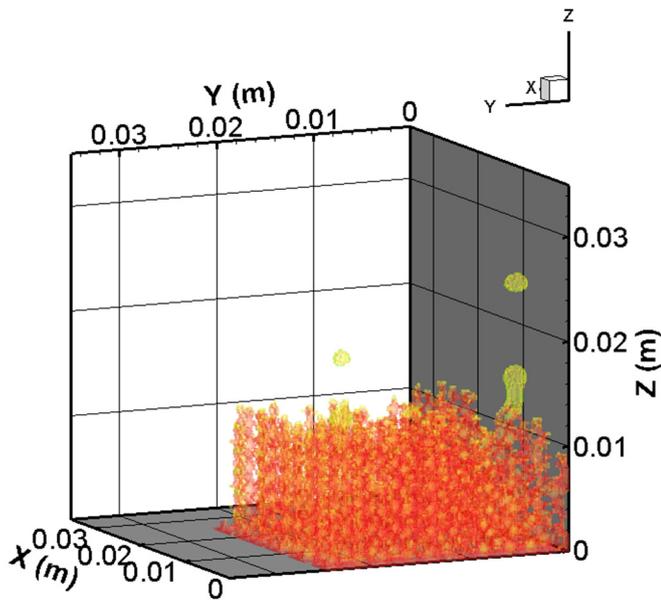


(b)

Fig.3-11 Gas passage thorough unconsolidated layer of which porosity is (a) 0.35 and (b) 0.43. Gas flow makes channel in unconsolidated layer. Grain diameter is 2.0 mm and the flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.



(a)



(b)

Fig.3-12 Gas passage through consolidated layer of which porosity is (a) 0.35 and (b) 0.45. Gas just migrate through large throat conquering capillary pressure in consolidated layer. 300 Pa is smaller than threshold pressure in case of low porosity. Grain diameter is 2.0 mm and the inlet pressure is 300 Pa. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

一方、ガスが毛管圧を超える圧力を有し、水中へ到達して気泡を形成するケースにおいて、その気泡径の分布を Fig.3-13 に示す。図はそれぞれのケースにおける、気泡径の最大値、最小値、および平均値を示している。固結層から生じた気泡のサイズが、小さめでばらつきが小さいのに対し、未固結層から生じた気泡のサイズは大きめであり、かつ、ばらついている。これは未固結層において、初期の間隙より大きなガスみちができたことにより、大きな気泡が形成されたと考えられる。同時に固結層の吹き出し口は安定しており、気泡はほぼ同箇所から吹き出し続けたが、未固結層のガスみちは、流動により少しずつ形状を変えたり崩れたりするため、そこから放出される気泡径もばらつきが生じる。

このように、固結層と未固結層では、そのガス進入挙動および気泡形成挙動に有意な差が認められた。想定したケースは必ずしも一般的な場合とは言えないが、海底下 CO₂ 貯留の漏出を想定した、砂粒スケールでの気泡形成の数値計算を行う場合は、未固結の海底堆積物層において固気液三相流動が影響することが示唆された。

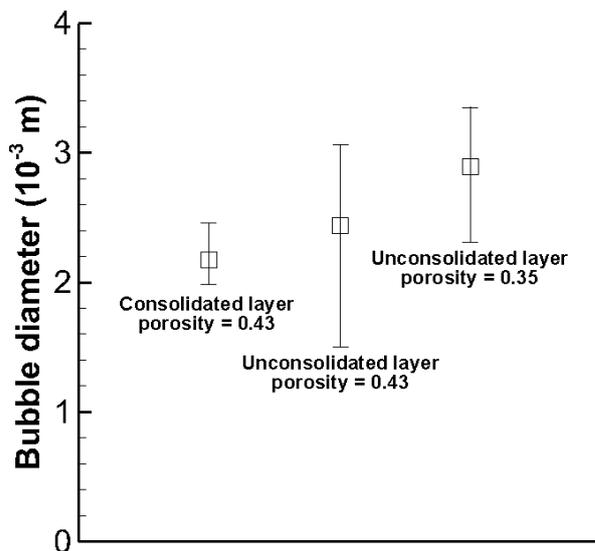


Fig.3-13 Bubble diameter distribution forming through consolidated layer and unconsolidated layer. Bar indicates the minimum and the maximum, and square indicates the mean value in each case.

3.2. 未固結層におけるガスみち・気泡形成に係るパラメタスタディ

本節では、本研究で仮定する計算領域を対象とした、層厚・流量・間隙率・粒径各パラメタに関しガスみち・気泡形成シミュレーションのパラメタスタディを行い、これらのパラメタがガスみち・気泡形成挙動に与える影響を調べる。シミュレーションには、前節と同様、海底堆積物表層のガス溜まり上に薄い砂礫層が乗っているというケースを想定した計算モデルを用いた。また、固体粒子層厚および計算領域サイズには、第2章2.5節で決定した粒径7倍および12.5倍のサイズをそれぞれ用いた。格子サイズ Δx は粒径0.125倍、模擬音速 c_0 は5.0 m/sとし、時間刻み幅 $\Delta t = \Delta x/c_0$ で与えている。各計算の物性値はTable 3-1と同様とする。Table 3-3に層厚以外のパラメタスタディで用いた値を示す。

Table 3-3 Properties for parameter study.

Properties	
Flow rate per area ($\times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$)	2.00×10^{-3} - 1.20×10^{-2} , 2.00 - 8.00
Porosity of sand layer	0.35, 0.43
Grain diameter (mm)	1.2, 1.6, 2.0

3.2.1 層厚の影響

本項では本研究における計算モデルにおいて、固体粒子の層厚がガスみち形成に与える影響を調べた。本計算モデルでは、海底堆積物のごく表面に大きなガス溜りができ、その上に薄く砂礫層が残っている状態を想定しているが、その中で層厚が与える影響を把握するためのシミュレーションを行った。

計算では粒径 $d_p = 2.0$ (mm)、間隙率 0.43 の層に対して、格子サイズ Δx を粒径 0.125 倍、鉛直領域サイズを粒径 18.75 倍、水平領域サイズを粒径 12.5 倍とした。その上で層厚 H に関し、粒径 d_p の 5 倍、7 倍、9 倍のモデルを作成した (Fig.3-14)。水・CO₂・砂粒子の各物性値は Table 3-1 と、計算パラメタは Table 3-2 で間隙率 0.43 としたものと同等である。単位面積あたり流量 $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ を与えて 1 sec 分の計算を行った時の、ガスみち等価径の解析結果を Fig.3-15 に示す。プロットは各ケースにおいて形成された 2~3 本のガスみちの、サイズのばらつき・時間変動を表す。

いずれの層厚においても、小さなガスみちのサイズはほとんど変わらないが、層厚の薄い $H=5 d_p$ のケースにおいて、大きなガスみちが発達した。一方で $H=7 d_p$ と $H=9 d_p$ のケースにおいて形成されるガスみちのサイズは、ほぼ変わらなかった。Fig.3-16 は各層厚ケースにおいて、形成されたガスみち断面 ($z=z_{smin}$ の水平断面図) の様子である。層厚の薄い $H=5 d_p$ のケースにおいては、ガスみちが大きくつながった状態で砂層表層まで到達しており、そのままブレイクスルーが起こったものと考えられる。一方、層厚が $H=7 d_p$, $H=9 d_p$ と増加すると、表層まで維持され貫通するガスみちのサイズは大きく変わらなくなった。特に本シミュレーションにおいては、鉛直方向にも成長法パッキングの周期充填を行っているためその影響が残り、ある程度層厚が増加した時に形成されるガスみちサイズは同様になったものと考えられる。

以降のパラメタスタディでは、層厚 $H=7 d_p$ の値を用いている。

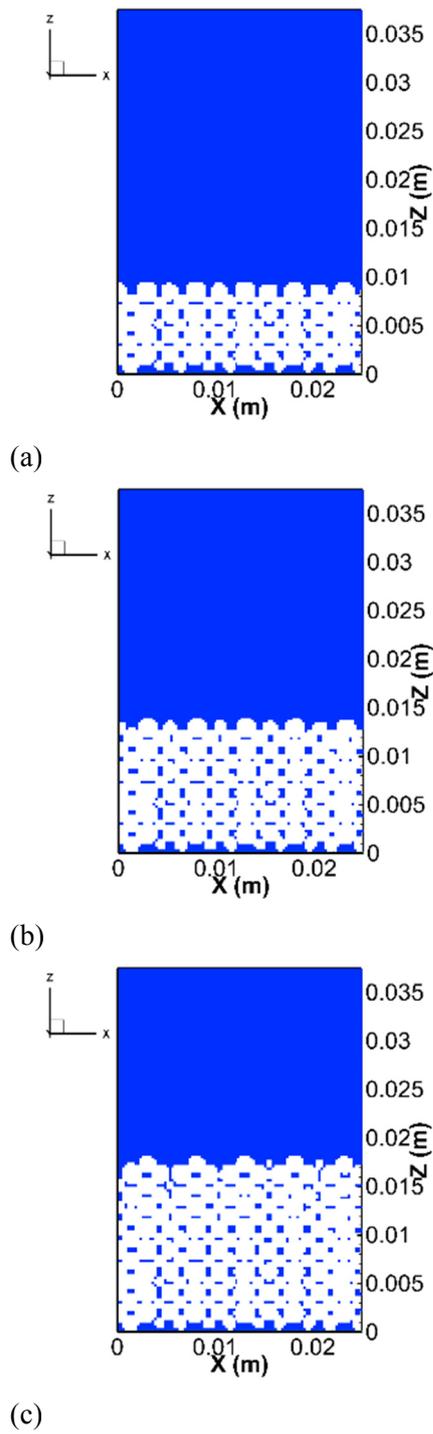


Fig.3-14 Conceptual diagram of simulation models for different thickness of sand layer. Thickness of sand layer H in each case is (a) $5 d_p$, (b) $7 d_p$, and (c) $9 d_p$, respectively. Grain diameter d_p is 2.0 mm and porosity is 0.43. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

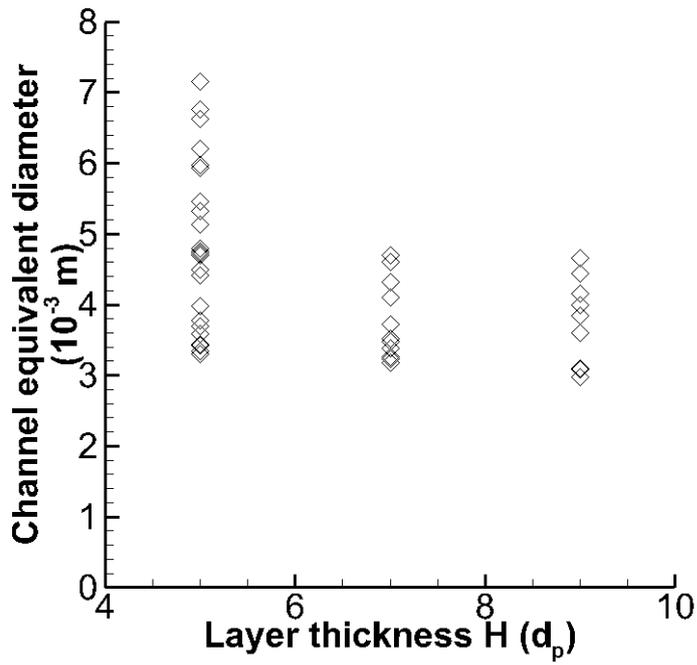


Fig.3-15 Simulated channel equivalent diameter for different thickness of sand layer. Grain diameter d_p is 2.0 mm, porosity of layer is 0.43, and flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

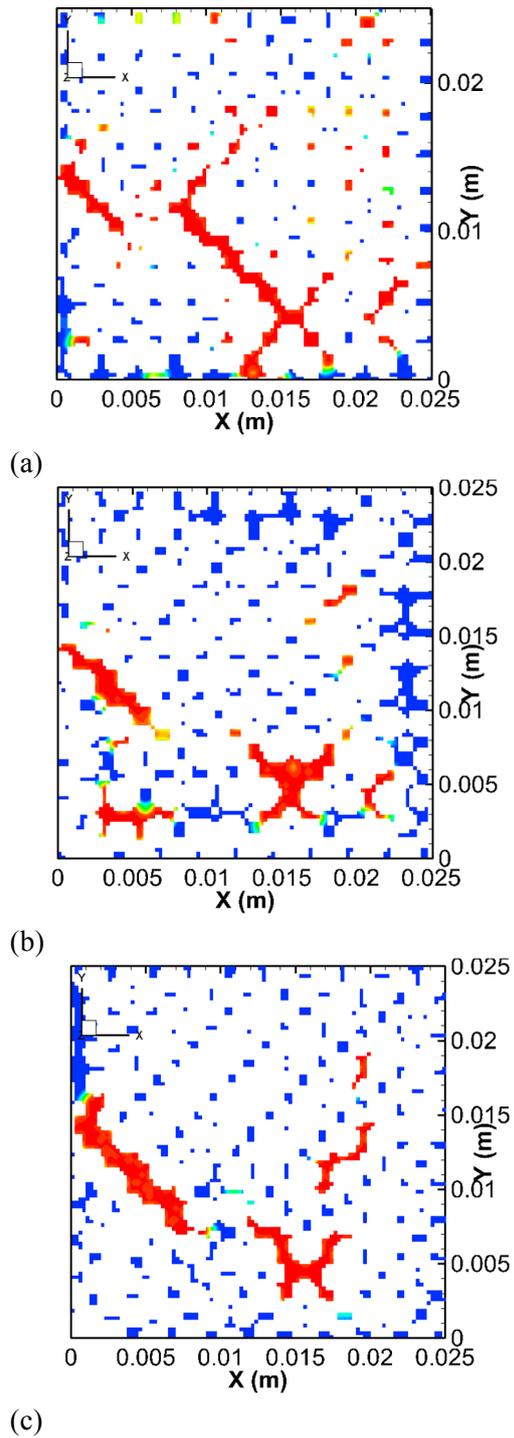
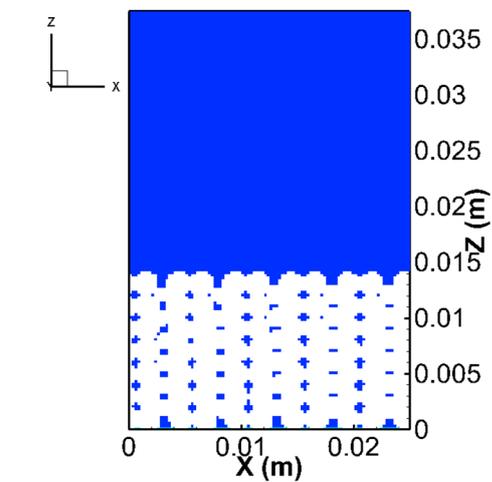


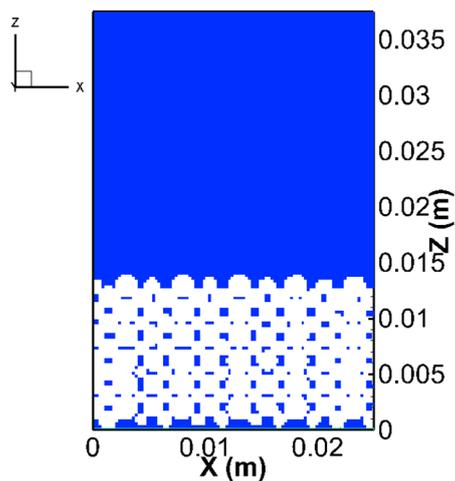
Fig.3-16 Cross-sectional view of gas channels at $z = z_{smi}$ for different thickness of sand layer. Thickness of sand layer H in each case is (a) $5 d_p$, (b) $7 d_p$, and (c) $9 d_p$, respectively. Grain diameter d_p is 2.0 mm, porosity of layer is 0.43, and flow rate per area is $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

3.2.2 流量と間隙率の影響

本項では、流量および固体粒子層の間隙率が、ガスみち・気泡形成に与える影響を調べるためのシミュレーションを行った。まず、成長法パッケージおよび重力沈降計算を用いて作成した固体粒子層の間隙率を、第2章5節2.5.1項に示した手法で算出し、間隙率0.35および0.43の層を得た (Fig.3-17)。



(a)



(b)

Fig.3-17 Initial cross-sectional of Y-plane in case where porosity is (a) 0.35 and (b) 0.43. Grain diameter is 2.0 mm. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

一般に、未固結である海底堆積物の間隙率を計測することは困難であるが、既往の文献では細粒砂堆積物で 0.26 - 0.53, 粗粒砂堆積物で 0.31 - 0.46, 礫堆積物で 0.24 - 0.38 程度の間隙率が得られている³⁻²⁾。また河田³⁻³⁾の実験では水を張った水槽に砂 1 kg を投入し、水の上昇高さから砂の体積および密度を求め、また沈積した砂層の高さから見かけ密度を求め、間隙率を算出している。その結果、砂粒子の大きさによって間隙率 0.27 - 0.41 の値を得ており、本研究の対象に近い粒径 1.18 - 2.00 mm の細砂（大）ケース（河田³⁻³⁾の分類名ママ）では間隙率 0.34 の値を得ている。したがって、間隙率 0.35 および 0.43 の値は、本研究の対象現象に対して妥当な設定であろう。この 2 つの層を用いた粒径 2.0 mm のモデルにおいて、単位面積あたり流量を変えたシミュレーションをそれぞれ計算時間 1.0 sec 分行った。流量以外の計算パラメタは Table 3-2 と同様である。

各シミュレーションにてスナップショットを出力し、ガスみちサイズを解析した結果を Fig.3-18 に示す。スナップショット間隔は、同一気泡の再カウントを避けるように、本項のシミュレーションでは 6.25×10^{-2} sec とした。ガスみちは第 2 章 2.5 節 2.5.1 項の通り、各スナップショットにおいてガスが砂層表面に抜け気泡またはプルームを形成している箇所と定義し、該当スナップショットの時点で気泡を放出していないものも含んでいる。Fig.3-18 のプロットは、各間隙率と単位面積あたり流量のケースで形成された、1 本ないしは複数のガスみちにおけるサイズのばらつき・時間変動を示すものとなる。

形成されたガスみちのサイズは、単位面積あたり流量による傾向は判別できなかった。間隙率による違いは、間隙率が大きい 0.43 のケースでガスみちのサイズが大きくなる方向にばらつき・変動が増えた。

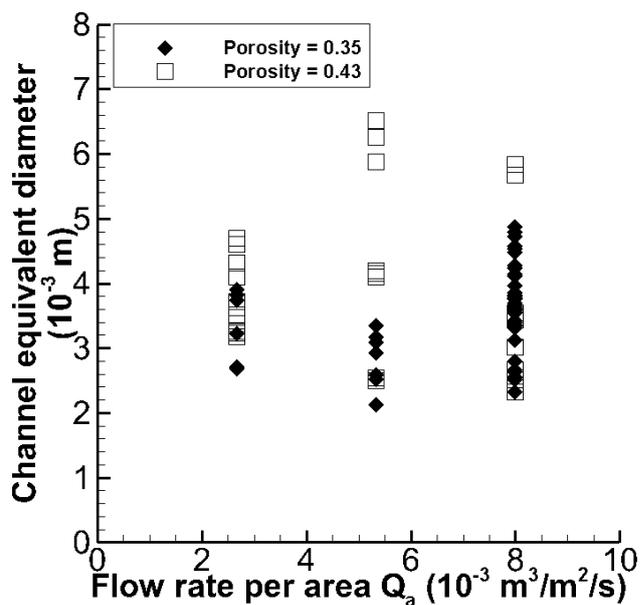


Fig.3-18 Simulated channel equivalent diameter and vs. flow rate per area for different porosity in cases where the order of flow rate per area is $O(10^{-3}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Grain diameter is 2.0 mm. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

Fig.3-18 に示すシミュレーションで、計算領域に与えた単位面積あたり流量のオーダー $O(10^{-3}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ は、河田³⁻²⁾の実験と同オーダーである。即ち、 $O(10^{-2}) \text{ m}$ オーダーの領域に $O(10^1) - O(10^2) \text{ mL}/\text{min}$ オーダーの流量となる。一方、 CO_2 地中貯留における CO_2 の漏出レートを考えると、例えば陸域の CO_2 圧入による石油増進回収法を実施している米国 Rangely では、年間 170 - 3800 ton の CO_2 漏出が地表で推定されている³⁻⁴⁾。これは CCS における目安となる 1 Mt/year の圧入において、0.1 %の漏出を仮定した 1000 ton/year と同等のオーダーとなる。漏出面積としては、たとえば英国スコットランドの Ardmucknish 湾で行われた CO_2 漏出実験では、5 m 長のパイプ型拡散器から放出した CO_2 の海底面における吹き出し面積は $O(100) \text{ m}^2$ となった³⁻⁵⁾。仮に、1000 ton/year の漏出流量に 100 m^2 の漏出面積を仮定し Table 3-1 のガス密度 $43 \text{ kg}/\text{m}^3$ を用いると、 CO_2 漏出の単位面積あたり流量は $7.37 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ となり、室内実験におけるオーダーと

は2桁から3桁小さくなる。これは逆に、室内実験における流量オーダーは、圧入自体と同程度のレートもしくは非常に集中した漏出が起こった極端ケースと捉えることもできる。

Fig.3-19 に、このオーダーの流量を用いて間隙率の影響を見たシミュレーションの解析結果を示す。流量が小さいケースでも、形成されるガスみちサイズは大きく変わらなかった。また、間隙率が大きい方がガスみちサイズが大きくなる方向にばらつく傾向も、流量 $O(10^{-3}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースと同様であった。

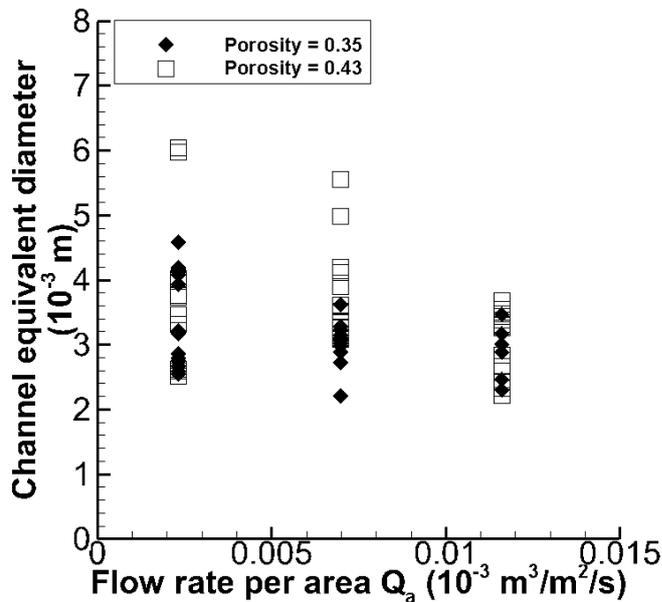
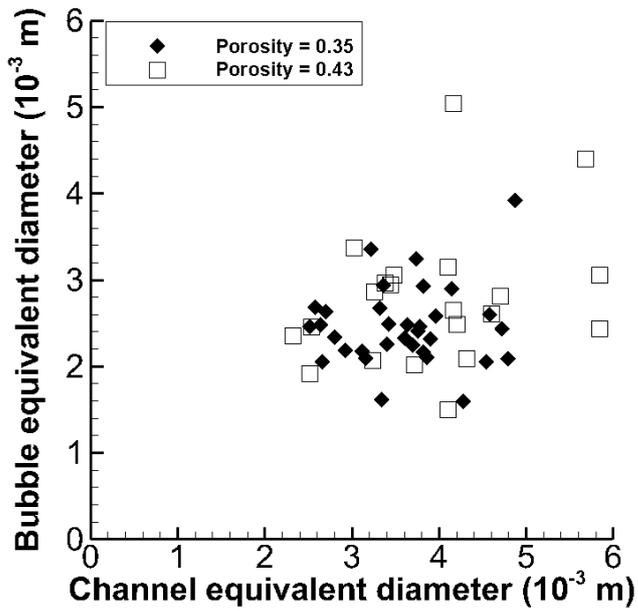


Fig.3-19 Simulated channel equivalent diameter vs. flow rate per area for different porosity in cases where the order of flow rate per area is $O(10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$. Grain diameter is 2.0 mm. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

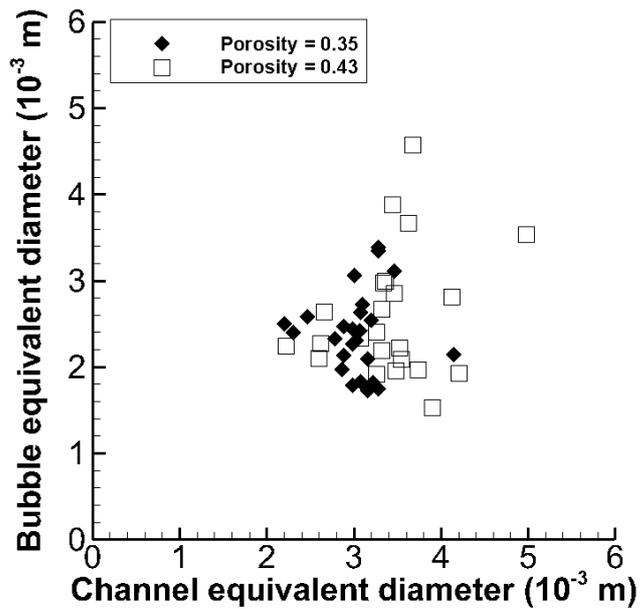
一方、ガスみちサイズに対する気泡サイズの分布に関し、単位面積あたり流量 $O(10^3) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ と $O(10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースの比較を Fig.3-20 に示す。図には各スナップショットにおける、気泡の等価径とその気泡を放出しているガスみちの等価径の組み合わせをプロットしている。各スナップショットにおいて気泡を放出していないガスみちは除外される。また、一スナップショットの同一ガスみちから複数の気泡が放出されているケースも存在する。

両者を比較すると単位面積あたり流量 $O(10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースでは、間隙率が大きいほどガスみち・気泡サイズともに大きくなっている傾向が、 $O(10^3) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースに比較してよりはっきりしている。

Fig.3-21 にシミュレーションにおけるガスみち等価径に対するガスみちあたり流量のプロットと、式(2-35)による円形オリフィス径の遷移流量のラインを示す。単位面積あたり流量 $O(10^3) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースではガスみち等価径に対するガスみちあたり流量が、円形オリフィス理論において気泡が流量依存の動的状態に移行する遷移流量を超えるものやそれに近いものが存在するが、 $O(10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースではこの遷移流量を大きく下回っている。このため $O(10^{-6}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースでは気泡がオリフィス径に依存する準定常状態にあり、間隙率によるガスみちの大きさの差異が気泡の大きさにもよく反映されたものと考えられる。一方、 $O(10^3) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$ のケースでは、気泡形成挙動が流量依存となる動的状態のレジームに移行しているものが存在し、間隙率によるガスみちの大きさの差異が放出される気泡の大きさに対して影響を小さくする可能性が示唆された。



(a)



(b)

Fig.3-20 Simulated bubble equivalent diameter vs. channel equivalent diameter for different porosity in cases where the order of flow rate per area is (a) $O(10^{-3})$ $m^3/m^2/s$ and (b) $O(10^{-6})$ $m^3/m^2/s$. Grain diameter is 2.0 mm. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

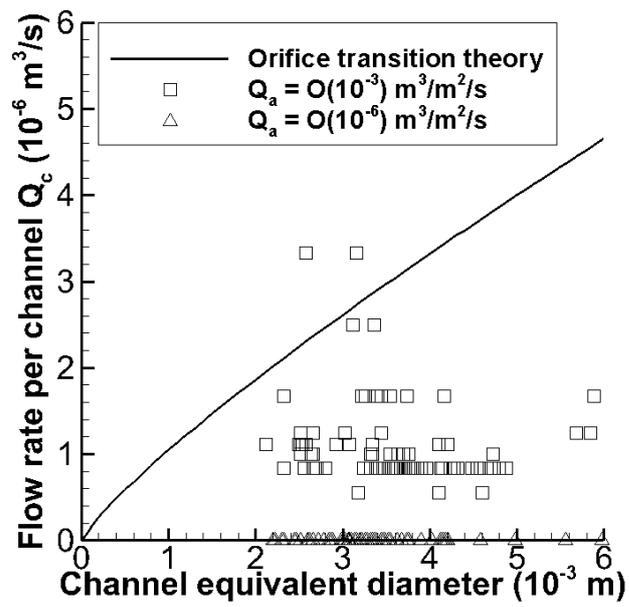


Fig.3-21 Flow rate per channel vs. channel (orifice) equivalent diameter. Solid line indicates the line of transient flow rate for a circular orifice defined by Eq. (2-35) and symbols indicate present simulation data for different orders of flow rate per area. Grain diameter d_p is 2.0 mm. Horizontal domain length is 2.5 cm and the thickness of sand layer is 1.4 cm.

3.2.3 流量と粒径の影響

本項では、固体粒子層の粒径がガスみち・気泡形成に与える影響を調べるためのシミュレーションを行った。本研究で扱う固体粒子層は、砂礫粒子から成る海底堆積物を想定している。Table3-4 に、堆積物の粒径分類をいくつか示す。Wentworth 法³⁻⁶⁾は地質学分野でよく用いられ、国際土壌学会法は農学等の分野、JIS は地盤工学会の分野でよく用いられている。いずれの分類においても、砂礫の区分境界は2 mm である。河田³⁻³⁾が実験に用いた、海底下 CO₂ 貯留の実証試験を行う苫小牧沖の海底から採取された堆積物の粒度分布は、全体の約30%が0.60~1.18 mm に分布していると同時に、4.75 mm を超える中礫も約2%混入していた³⁻³⁾。

Table 3-4 Classification of grains of sediment.

Wentworth 法 ³⁻⁵⁾	泥		砂					礫			
	粘土	シルト	極細粒	細粒	中粒	粗粒	極粗粒	細礫	中礫	大礫	巨礫
	0.004	0.0625	0.125	0.25	0.5	1	2	4	64	256 (mm)	
国際 土壌学会法	泥		砂				礫				
	粘土	シルト	細砂	粗砂							
	0.002	0.02	0.2	2			(mm)				
JIS A1204 (2009)	泥		砂			礫					
	粘土	シルト	細砂	中砂	粗砂	細礫	中礫	粗礫			
	0.005	0.075	0.25	0.85	2	4.75	19	~75	(mm)		

以上を踏まえて本研究では主に河田³⁻³⁾の実験の細砂(大)(河田³⁻³⁾による分類ママ)に相当する1.2 - 2.0 mm, Table 3-3のWentworth法³⁻⁶⁾では極粗粒砂に分類される粒子を対象に, ガスみち・気泡形成挙動シミュレーションを行った。同時に, 中礫となる4.0 mmの粒子層についても検討を加える。なお, 河田³⁻³⁾の実験に用いられた砂層や実際の海底堆積物中では, 粒径は均一ではなく分布を有するが, 本研究ではガスみち・気泡形成挙動に与える影響を検討する上で, 単純化のため各ケースにおける粒径は均一とした。また各ケースの間隙率は0.43の層で統一した。各シミュレーションの固体粒子層厚および領域サイズは, それぞれ粒径7倍および12.5倍とした。また, 格子サイズ Δx は粒径0.125倍, 模擬音速 c_0 は5.0 m/sとし, 時間刻み幅 $\Delta t = \Delta x / c_0$ で与えている。ガスみちおよび気泡サイズを解析するスナップショットの間隔は, 6.25×10^{-2} secとした。Table 3-5に各粒径に対する計算パラメータを示す。

Fig.3-22に粒径を変化させた場合の, 単位面積あたり流量に対するガスみち等価径を示す。計算時間は1.0 sec分であり, 図におけるプロットは前項と同様, プルームを形成し気泡を放出していないガスみちを含む。また, 各粒径と単位面積あたり流量のケースで形成された, 1本ないしは複数のガスみちにおけるサイズのばらつき・時間変動を示す。

Table 3-5 Simulation parameters for cases of different grain sizes.

Parameters \ Grain diameter d_p (m)	1.2×10^{-3}	1.6×10^{-3}	2.0×10^{-3}
Porosity of sand layer ϕ	0.35, 0.43	0.35, 0.43	0.35, 0.43
Layer thickness H (m)	8.4×10^{-3}	1.12×10^{-2}	1.4×10^{-2}
Horizontal domain length L_D (m)	1.5×10^{-2}	2.0×10^{-2}	2.5×10^{-2}
Vertical domain length (m)	2.25×10^{-2}	2.40×10^{-2}	3.75×10^{-2}
Node spacing Δx (m)	1.5×10^{-4}	2.0×10^{-4}	2.5×10^{-4}
Mock acoustic velocity c_0 (m/s)	5.0	5.0	5.0
Time step size Δt (sec)	3.0×10^{-5}	4.0×10^{-5}	5.0×10^{-5}

全体的に粒径が大きいほど、形成されるガスみちは大きくなる方向にばらついている。Fig.3-23 にガスみち等価径を粒径で割って無次元化した図を示す。棒グラフは各ケースの平均サイズを、上下のバーは最大値・最小値範囲を示す。無次元化ガスみちサイズは、粒径が大きいケースでのばらつき・変動の大きさが見られる一方、粒径いずれのケースでも差が小さく、実サイズのガスみちが粒径に応じて大きくなっている傾向を示唆する。また Fig.3-24 に、形成されたガスみちのうち各スナップショットにおいて気泡を放出しているガスみちに対し、その等価径と放出された気泡等価径のプロットを示す。本計算の条件下では、粒径が大きいほど形成されるガスみちが大きい傾向にあり、放出される気泡サイズもそれに伴う傾向が見られた。

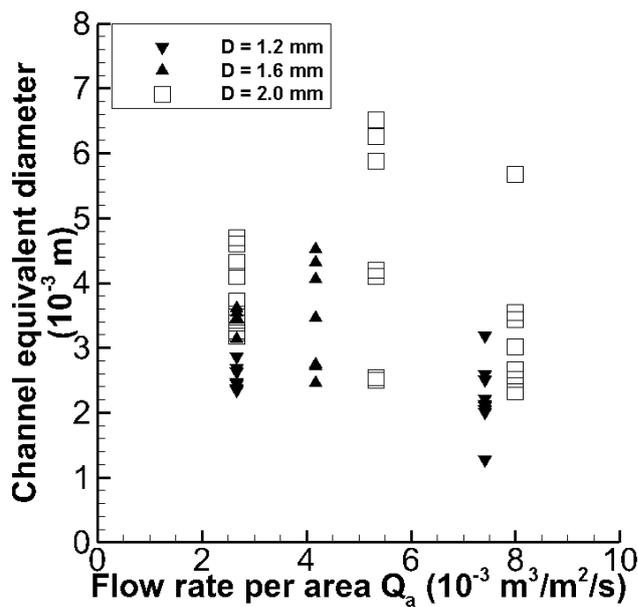


Fig.3-22 Simulated channel equivalent diameter vs. flow rate per area for different grain size. Porosity of sand layer is 0.43. Other simulation parameters are indicated in Table 3-5.

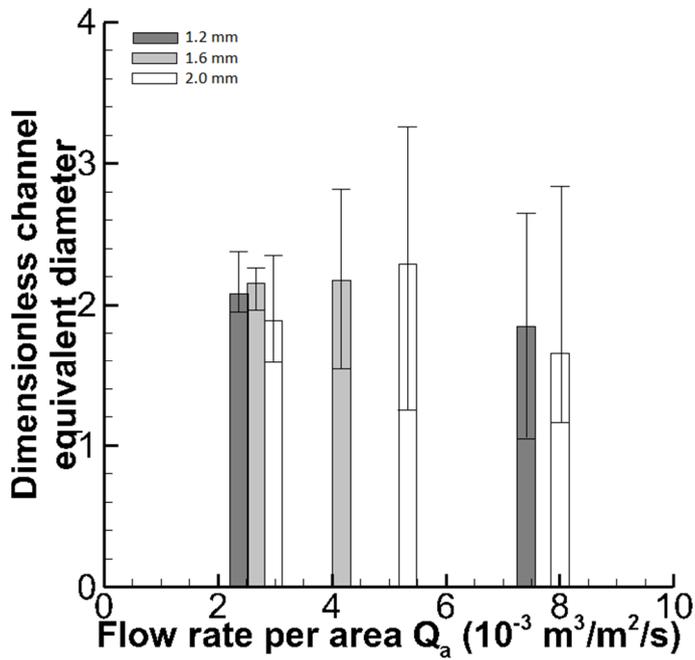


Fig.3-23 Dimensionless channel equivalent diameter ($= d_c/d_p$) vs. flow rate per area for different grain size.

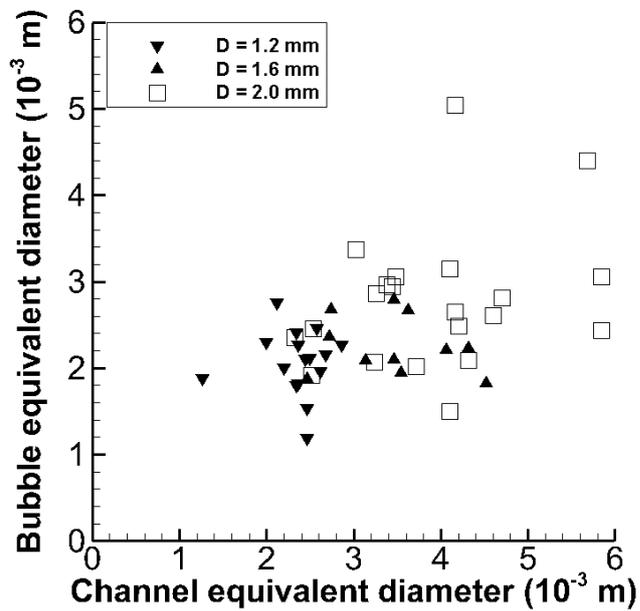


Fig.3-24 Simulated bubble equivalent diameter vs. channel equivalent diameter for different grain size.

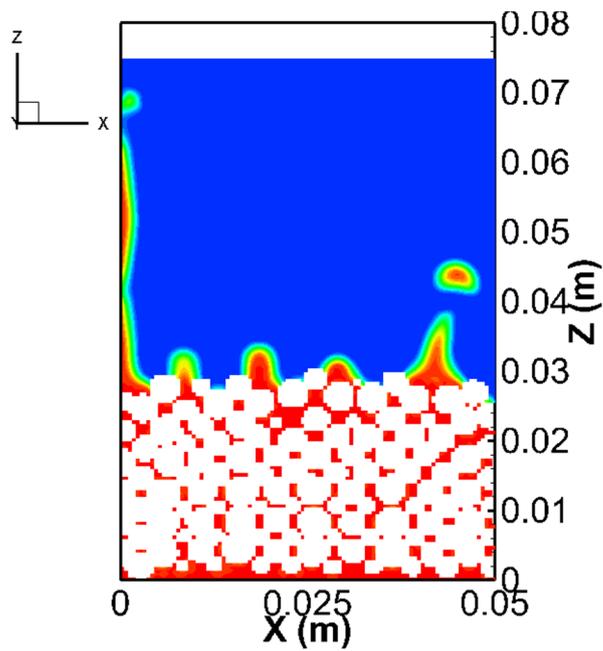
Porosity of sand layer is 0.43. Other simulation parameters are indicated in Table 3-5.

また、Table 3-3 の Wentworth 法³⁻⁶⁾において中礫の分類となる粒径 4.0 mm について、ガス流入のシミュレーションを行った結果を Fig.3-25 に示す。層の間隙率は 0.43、単位面積あたり流量は海底下 CO₂ 貯留の漏出を想定した $6.98 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ とした。計算パラメタを Table 3-6 に示す。

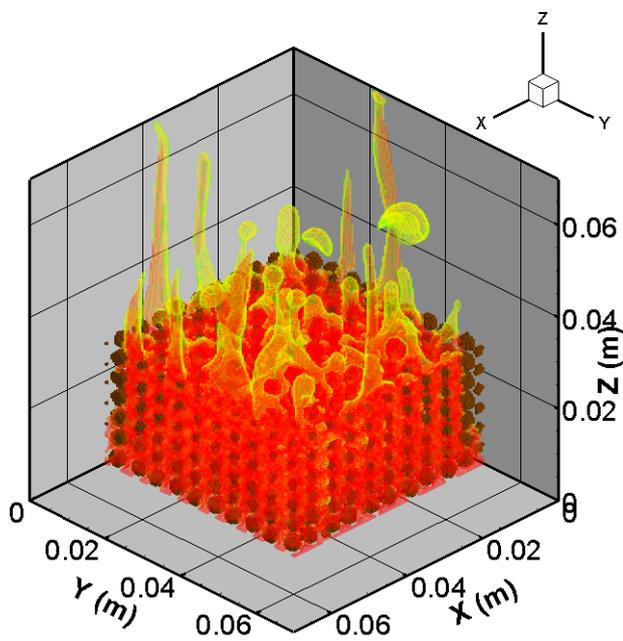
このサイズまで粒径が大きくなると、ガスは固体粒子を大きく動かさずとも間隙を通過して上昇していくことができ、結果的に未固結であっても、明確なガスみちを作ることなく層表面まで上昇した。全体からガスが密に上昇するため、個々の気泡を形成するというよりはブルーム状のガス吹き出しとなった。間隙率 0.35 の層においても、同様の挙動が認められた。形成したガスみちを通じての気泡放出とはメカニズムの異なる現象となるため、粒径 2.0 mm 以下の層における挙動と同様に解析することは、適切でないと考えられる。

Table 3-6 Simulation parameters for bubble forming simulation with grains of 4-mm diameter.

Parameters	
Grain diameter d_p (m)	4.0×10^{-3}
Porosity of sand layer ϕ	0.43
Layer thickness H (m)	2.8×10^{-2}
Horizontal domain length L_D (m)	5.0×10^{-2}
Vertical domain length (m)	7.5×10^{-2}
Node spacing Δx (m)	5.0×10^{-4}
Mock acoustic velocity c_0 (m/s)	5.0
Time step size Δt (sec)	1.0×10^{-4}
Flow rate per area Q_a ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$)	6.98×10^{-6}



(a)



(b)

Fig.3-25 (a) Cross-sectional and (b) three-dimensional snapshot in case where grain diameter is 4.0 mm.

Gas intrudes almost all of throats. Porosity of sand layer is 0.43. Horizontal domain length is 5.0 cm and the thickness of sand layer is 2.8 cm.

3.3.未固結層における気泡形成メカニズムの考察

本節では 3.1 節, 3.2 節の結果を踏まえて, 未固結層における気泡形成のメカニズムを考察する. 本シミュレーションはあくまで特定の計算条件の下に行ったものであるため, その影響を考慮すると共に, 一般の未固結層におけるメカニズムにつながる挙動を推定する. 本シミュレーションの結果では, 未固結層ではガスみちが形成され, そこへガスが選択的に通って気泡が形成された. これを踏まえて, まず 3.3.1 項において全体の結果を円形オリフィス理論³⁻⁷⁾および河田³⁻³⁾の実験と比較する. 続く 3.3.2-3.3.4 項で流量, 間隙率および粒径の影響を考察する.

3.3.1 円形オリフィス理論および室内実験との比較

既に述べたように, 特に砂礫粒子から成る海底堆積物中での挙動は, ガスみちをノズルと見なして円形オリフィスからの気泡形成挙動との類似が予測できる. Fig.3-26 に Table 3-1 の物性と式 (2-35)から導かれる円形オリフィス径に対する遷移流量 (実線), および本シミュレーションで得られた, ガスみちの等価径に対するガスみちあたりの流量をプロットした. 単位面積あたりの流量を大きく与えたケースでは, ガスみちあたりの流量がガスみち等価径に対する理論遷移流量に近いものも存在するが, 基本的にはこれを下回っており, 準定常状態下での議論が妥当であると言える. 特に海底下貯留における漏出を想定した流量におけるケースでは, 遷移流量を著しく下回っている.

Fig.3-27 は同じく Table 3-1 の物性と式(2-35)から導かれる, 準定常状態下での円形オリフィス径に対する気泡径 (実線) と, 本シミュレーションで得られたガスみちの等価径に対する気泡等価径 (白四角) をプロットしたものである. シミュレーションによる結果では, 理論値と同様に気泡等価径がガスみち等価径の 1/3 乗に相関係数 $R=0.45$ の正の相関を有した (破線). 一方, 放出された気泡サイズは, ガスみちサイズに対し全体的に円形オリフィスの理論値より小さいものとなった.

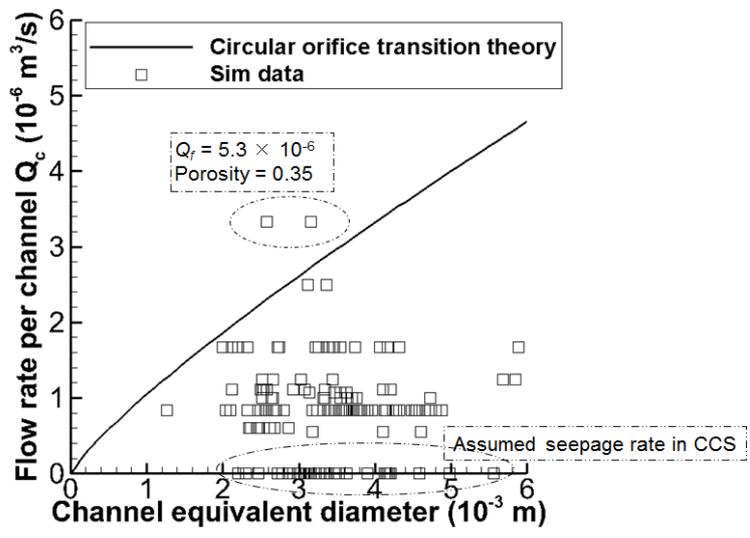


Fig.3-26 Transition flow rate vs. channel (orifice) diameter in circular orifice theory (solid line) and present simulation data (square symbols).

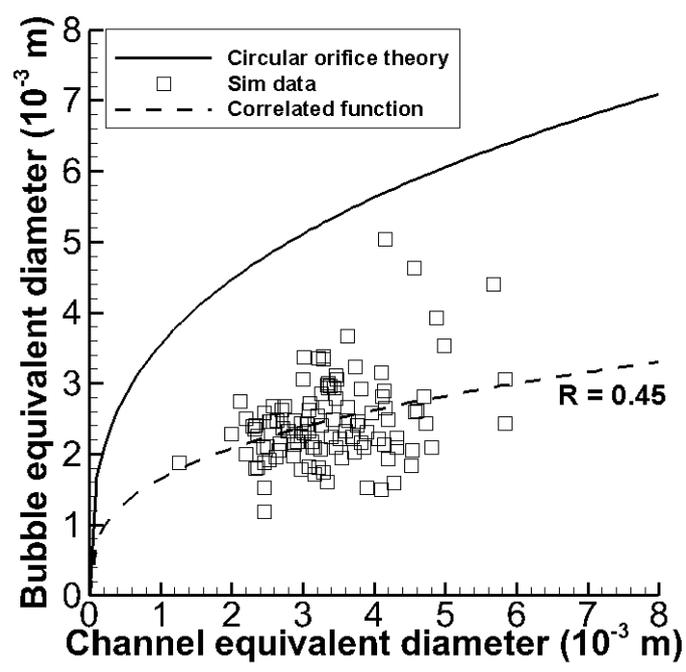
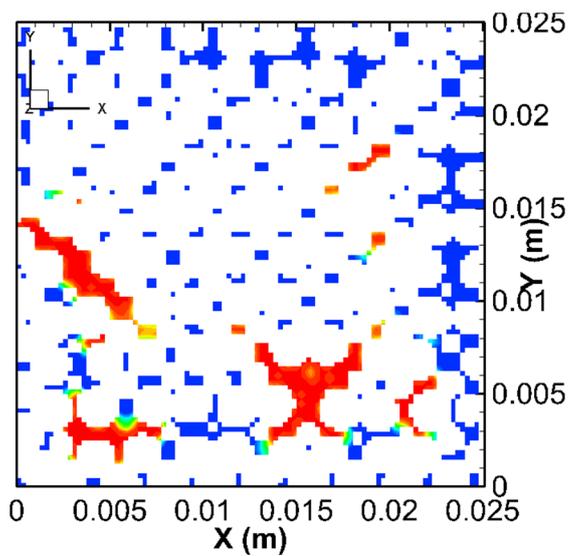


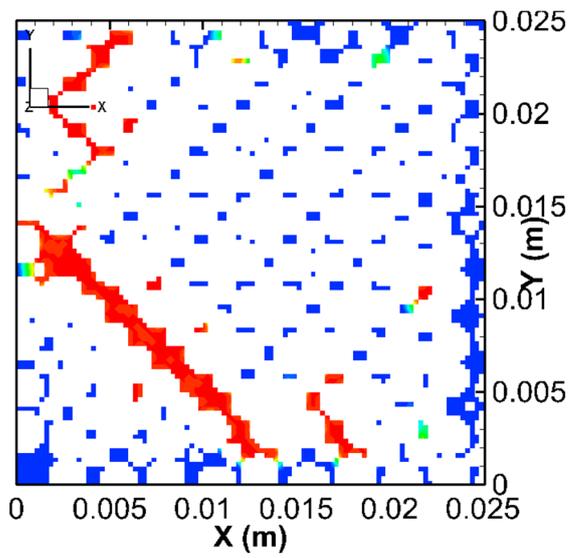
Fig.3-27 Bubble equivalent diameter vs. channel equivalent (orifice) diameter in circular orifice theory (solid line) defined by Eq.(2-35), present simulation data (square symbols) and its correlated function (dashed-line). Correlation coefficient R is 0.45.

これは、本研究ではガスみちの断面を円と仮定して等価径を算出しているが、実際には Fig.3-28 に見られるようにガスみち断面は必ずしも円形に近くはなく、スリット状のものが多いことが、原因として挙げられる。一般にスリットから生じる気泡は、特に界面張力の効果が大きい準定常状態のレジームにおいて、界面張力で円形断面を形成しようとするのに対し、矩形の孔との力学不安定により十分成長する前に離脱するため、同面積の円形オリフィスから生じる気泡より小さくなる^{3-8,9)}。したがって、本シミュレーションでは、形成されたガスみちの断面形状が影響して、Fig.3-27 のプロット点が全体的に、円形オリフィスを仮定した理論値より小さくなったと考えられる。

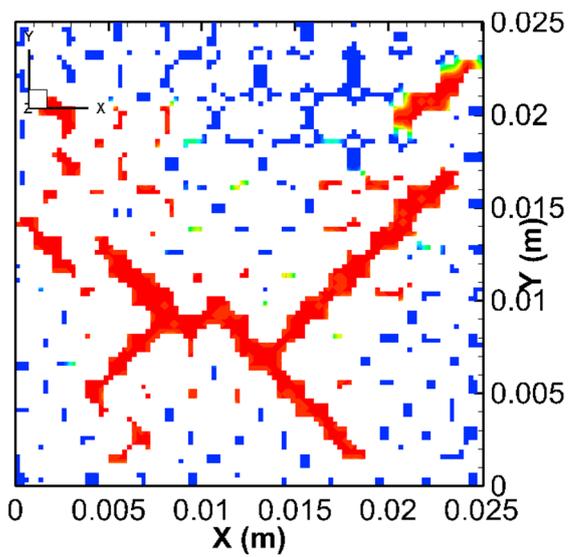


(a)

Fig.3-28 Cross-sectional diagram of gas channel in present simulation (Red color indicates gas phase) with different flow rate. In these cases, grain diameter is 2.0 mm, porosity of layer is 0.43, and flow rate per area is (a) 2.67×10^{-3} , (b) 5.33×10^{-3} , and (c) 8.00×10^{-3} ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$). (Continued.)



(b)



(c)

Fig.3-28 (Contd.) Cross-sectional diagram of gas channel in present simulation (Red color indicates gas phase) with different flow rate. In these cases, grain diameter is 2.0 mm, porosity of layer is 0.43, and flow rate per area is (a) 2.67×10^{-3} , (b) 5.33×10^{-3} , and (c) 8.00×10^{-3} ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{sec}$).

ガスみち断面形状の効果を考えるため、円筒ノズルを模した計算モデルを用いた気泡形成計算の結果と円形オリフィスにおける気泡形成の理論線を Fig.3-29(a)に示す。水・CO₂の物性は Table 3-1 と同様とし、未固結層の代わりに 3.0 mm, 4.0 mm, 5.0 mm の円筒ノズルを模したモデルにおいて、最初の気泡が形成されるまでの計算を行った。計算パラメータを Table 3-7 に示す。ノズルあたりの流量は、単位面積あたり流量 $O(10^{-3})\text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ のケースにおいて算出されるガスみちあたり流量と同等の、準定常状態下の値とした。また、Fig.3-29(b)は円筒径 4.0 mm の時の気泡形成スナップショットである。立方体格子分割により円筒内部がなめらかとはならないため、理論値からの若干のずれは見られるが、本研究の未固結層において形成されたスリット状のガスみちと比較して、円筒からの気泡形成は理論値に漸近する結果となっている。このことから、スリット状のガスみち断面が、理論値より小さい気泡形成の一因となっていることが示唆される。

Table 3-7 Simulation parameters for bubble forming from circular cylinder.

Parameters	
Grain diameter d_p (m)	$3.0 \times 10^{-3}, 4.0 \times 10^{-3}, 5.0 \times 10^{-3}$
Layer thickness H (m)	1.0×10^{-2}
Horizontal domain length L_D (m)	1.25×10^{-2}
Vertical domain length (m)	3.75×10^{-2}
Node spacing Δx (m)	2.5×10^{-4}
Mock acoustic velocity c_0 (m/s)	5.0
Time step size Δt (sec)	5.0×10^{-5}
Flow rate per nozzle Q_c (m ³ /s)	2.0×10^{-6}

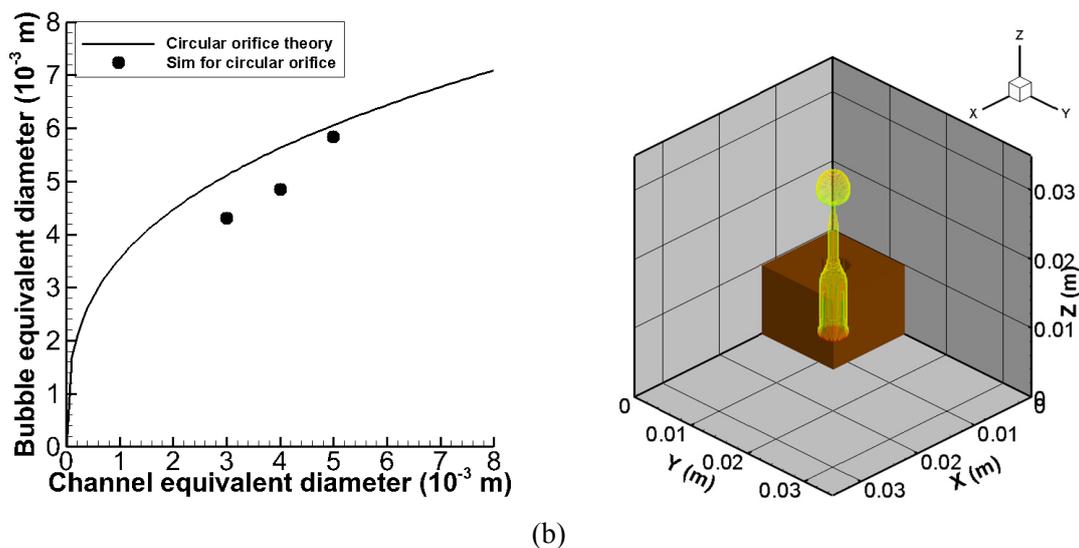


Fig.3-29 (a) Bubble equivalent diameter vs. orifice diameter in circular orifice theory (solid line) defined by Eq.(2-35) and simulation data for circular orifice (black circular symbols). (b) Snapshot of bubble forming from circular orifice of 4-mm diameter.

本シミュレーションにおいて、ガスみちが 45 度方向に広がりスリット状の構造を多く形成した原因の一つは、模擬砂層の作成において多数の粒子を充填しつつパラメスタディにおける間隙率コントロールを行うため、成長法パッケージの繰り返し充填を行った際の周期的構造が、本計算領域において重力沈降の後も強く残っていることにあると考えられる。本研究では、未固結層中を通じた気泡形成挙動について、円形オリフィスからの気泡形成挙動との類似を想定し、固気液三相流動によって形成されるガスみちと気泡のサイズに着目して解析を行ったが、粒径や間隙率、流量、固体粒子の充填状態によって、ガスみちの断面形状に傾向が出ることは十分考えられる。たとえば、Fig.3-26 は粒径 2.0 mm、間隙率 0.43 のケースにおいて、単位面積あたり流量を変えた時のガスみち断面を示したもののだが、流量が大きくなるほどスリット状のガスみちが拡大していくような傾向が見られる。ただし、本研究のシミュレーションでは流量オーダーが小さいケースにおいても、上述の模擬砂層パッキングの影響と思われるスリット状のガス

みちが発生しているため、粒径や間隙率の影響と併せて今後更なる検討が必要であろう。また断面形状による気泡形成挙動への影響についても、今後の課題である。

本シミュレーションでは、未固結層において形成されたガスみちからの気泡形成挙動に、流量によるレジーム変化およびガスみちサイズと気泡サイズの相関に関し、円形オリフィス理論との一定の類似が見られた。粒子層の充填構造によりスリット状のガスみちが形成され、放出される気泡のサイズへ影響を与えたと考えられるが、円筒に近いガスみちが形成されるような場合には、いっそうの理論との類似が推測される。

また Fig.3-30 に、シミュレーションで得られたガスみちあたりの流量に対する気泡等価径と、河田³⁻³⁾の実験で細砂(大)(河田³⁻³⁾の分類ママ)を用いたケースにおける同値をプロットした。当該ケースにおいて粒径は 1.18 - 2.0 mm, 層の間隙率は 0.34 とされており、シミュレーションにおいては粒径・間隙率ともにこれより同等からやや大きい値を設定している。河田³⁻³⁾の実験における各ガスみちの形状や大きさは判別されていないが、シミュレーションの値は実験で観測されたうちの小～中程度の気泡と同程度であった。

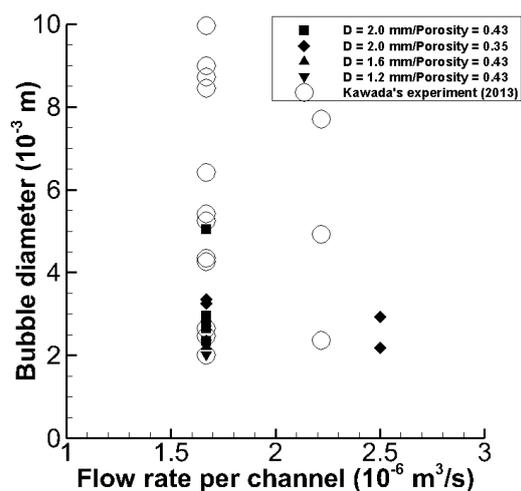


Fig.3-30 Bubble diameter vs. flow rate per channel in present simulation data and results of sand (1.18 - 2.00 m) case in kawada's experiment³⁻³⁾.

河田³⁻³⁾の実験と本研究におけるシミュレーションの主要な差異としては、(1) 河田の実験で用いられた気体は空気であり、室温大気圧を仮定するとその密度は約 1.2 kg/m^3 となり、本シミュレーションで設定した温度・圧力 $10^\circ\text{C} \cdot 2 \text{ MPa}$ 条件下の CO_2 密度 43 kg/m^3 とは数十倍の違いがあること、(2) 河田の実験では、砂層は水を張った水槽へ固体粒子を入れたランダムな沈降充填であるが、本シミュレーションでは計算領域内に周期的な充填構造が残っていること、(3) 河田の実験では粒径が分布を有するが、本シミュレーションでは各ケースにおける粒径は均一であること、の三つが挙げられる。

このうち (1) の密度については式(2-35)に示す通り、室内実験や本シミュレーションの条件下において気泡径はガス密度によらず、体積流量が同一であれば影響は小さいと考えられる。一方 (2) の粒子充填状態に関しては、河田の実験におけるガスみちの形状に関するデータがないため正確な比較は不可能であるが、前述のように周期的な構造が残っている本シミュレーションの充填ではスリット状のガスみちが多く形成されたため、円筒に近いガスみちが形成される場合と比較して、小さい気泡が放出された可能性がある。また (3) の粒径分布に関しては、形成されるガスみちサイズや形状、ひいては生じる気泡に影響を与えると考えられる。一般に、層の粒径が均一でなく分布を有する時、間隙率は小さくなる³⁻¹⁰⁾。これは、大きな粒子による間隙へ小さな粒子が入り込むためである。しかし、固気液三相流動において粒径よりも大きなガスみちができる時、このような構造が維持されるとは限らない。間隙率や粒径の大きさは形成されるガスみちのサイズに影響を与えることが、本パラメタスタディから示唆されているが、粒径分布がガスみち・気泡形成挙動に与える影響については、今後更なる検討が必要である。

3.3.2 流量の影響

本研究におけるケーススタディでは、単位面積あたりの流量 ($\text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}$) オーダーが $O(10^{-3})$ のケースと $O(10^{-6})$ - $O(10^{-5})$ のケースで、形成されるガスみちの大きさやばらつきに顕著な差異は見られなかった。これはガスみちの形成が、ガス溜まりが固体粒子の再配置を動かすのに十分な圧力を有した時に始まるため³⁻¹¹⁾、本研究の範囲内における流量の差異では圧力の上昇にかかる時間が異なるのみであり、固体粒子にかかる圧力が変わらないためであると考えられる。Fig.3-31 に粒径 2.0 mm、間隙率 0.35 のケースにおいて単位面積あたり流量 $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ および $2.32 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ のケースにおける、ガスブルームが粒子層に行き当たり押しつけようとしている際の圧力差を示す。いずれのケースでも圧力差の高まりは 300 Pa 程度であり、単位面積あたり流量により固体粒子を動かす圧力に違いが見られないことを示唆している。

一方、一旦ガスみちが形成されると、ガスみちサイズに対するガスみちあたりの流量によって、気泡形成挙動は異なるレジームになり得る。上述の通り、単位面積あたり流量の増加によって形成されるガスみちサイズは大きく変わらず、またこの時、面積あたりに形成されるガスみちの本数にも限度があるため、単位面積あたり流量の増加はガスみちあたり流量の増加へ繋がる。Fig.3-32 に Table3-1 の物性と式(2-35)にしたがう、ガスみちあたりの流量と気泡径の関係を、ガスみち径の違いに対し示す。ガスみちあたり流量が小さい場合、放出される気泡サイズは流量によらずガスみちサイズに依存する準定常状態のレジームにあるが、遷移流量を超えると流量に応じて気泡サイズが大きくなりガスみちサイズに依存しなくなる、動的状態のレジームとなる。Fig.3-32 に示す通り、室内実験レベルあるいは極端な漏出を想定した流量では、ガスみちを通じた気泡形成挙動が動的状態のレジームに移行する可能性が示唆される。

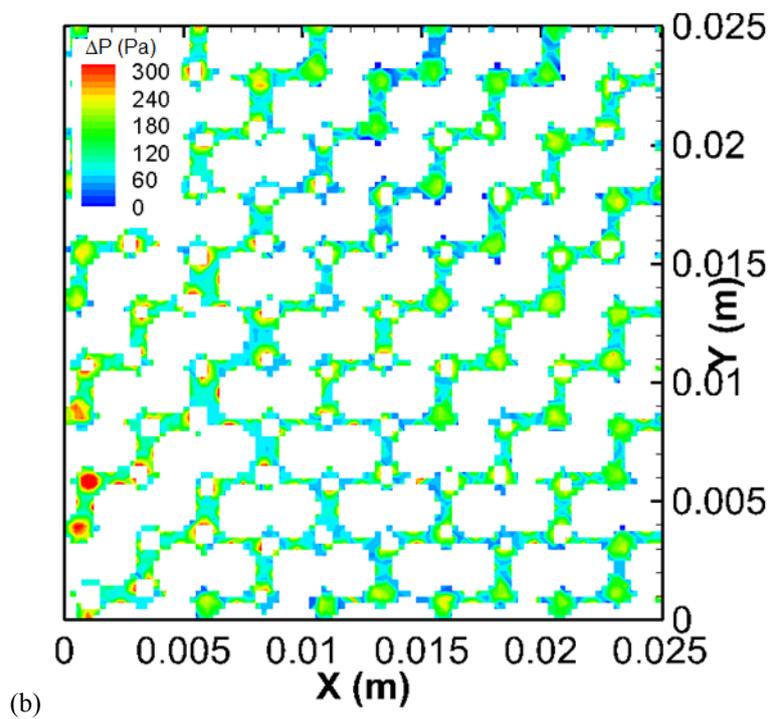
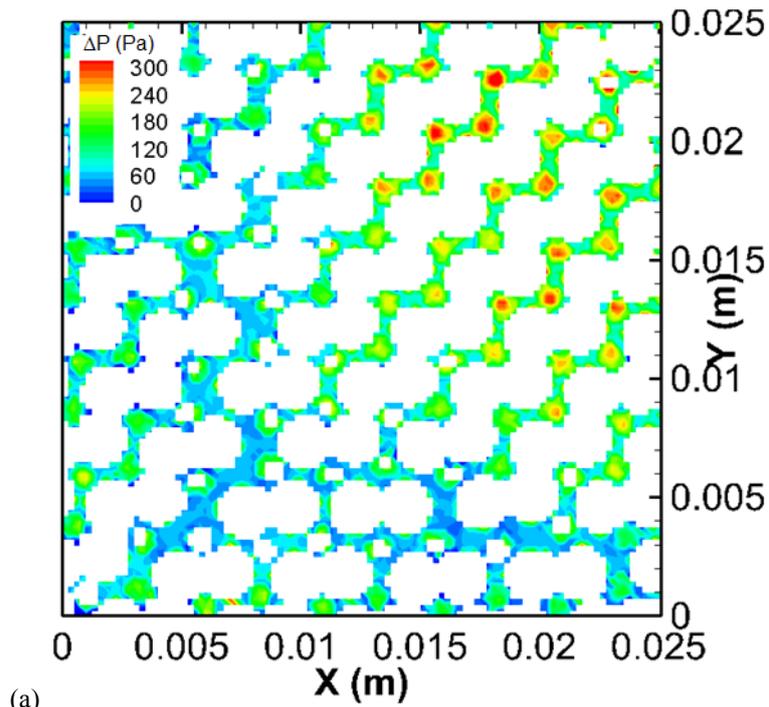


Fig.3-31 x-y plane snapshots of pressure difference at the tip of gas phase in unconsolidated layer of which grain diameter is 2.0 mm porosity is 0.35 in the case where flow rate per area is (a) $2.67 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ and (b) $2.32 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$.

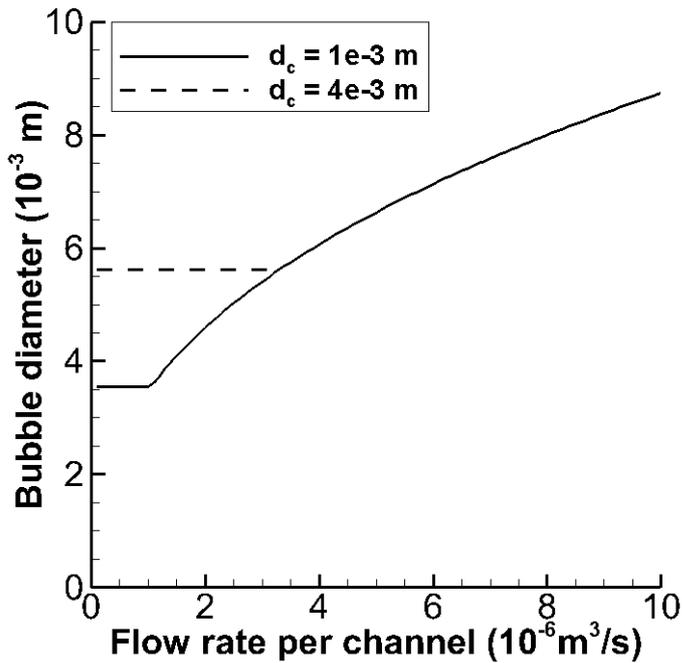


Fig.3-32 Bubble diameter forming at orifices of different diameters d_c vs. flow rate per channel, following Eq. (2-35) and properties in Table 3-1.

3.3.3 流量と間隙率の影響

本研究のケーススタディにおいて、形成されるガスみちサイズは間隙率が大きいケースでは間隙率が低いケースに比較して大きくなる方向にばらつき、そこから形成される気泡サイズも同様の傾向を示した。これは間隙率が大きいと粒子の再配置に対する自由度が高くなることが要因だと考えられる。

また本シミュレーションでは、単位面積あたり流量のオーダーが $O(10^{-3}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ と大きい場合、ガスみちサイズによっては気泡形成挙動のレジームが準定常状態から動的状態に移ることによって気泡形成のガスみちサイズ依存がなくなり、ひいては間隙率によるガスみちサイズの違いが影響しにくくなったと考えられる。一方、単位面積あたり流量 $O(10^{-6}) - O(10^{-5}) \text{ m}^3/\text{m}^2/\text{s}$ のケースでは、気泡形成挙動は準定常状態のレジームにあり、間隙率によるガスみち形成の差が気泡形成にもよく現れることとなった。海底下貯留

CO₂の漏出においても、未固結の海底堆積物を通じて漏出する気泡形成挙動には、このような間隙率の影響が現れるケースの存在が推定される。

3.3.4 流量と粒径の影響

本研究の粒径範囲 1.2 - 2.0 mm において、形成されるガスみちサイズは粒径が大きくなるほど大きく、またばらつきが見られるようになった。これは大きな粒子ほど大きな間隙を維持することができる一方で、一つの粒子が動くことで空間の形状が大きく変わるためだと考えられる。形成されたガスみちから放出される気泡も、ガスみちの拡大にしたがって概ね粒径が大きいほど大きい傾向を示したが、間隙率と同様、流量が大きくなると気泡形成挙動が動的状態のレジームに移り、粒径によるガスみちサイズの違いが気泡サイズに影響しにくくなると考えられる。本研究の計算条件下では、ガスみちサイズとガスみちあたり流量の関係は概ね準定常状態のレジームにあり、粒径によるガスみち形成への影響が気泡形成にも及ぶ結果となった。海底下貯留 CO₂の漏出においても、未固結の海底堆積物を通じて漏出する気泡形成挙動には、このような粒径の影響が現れるケースの存在が推定される。

上記は Wentworth 法³⁻⁶⁾では極粗粒砂に分類される粒径範囲内での話であるが、一方で粒径が中礫の分類に入るものになると、間隙が十分な大きさを有するため、流入してくるガスは明確なガスみちを形成することなく層中を全体的に上昇し、個々の気泡を形成するというよりはプルーム状の吹き出しとなった。反対に粗粒砂以下に分類されるような小さな粒径の場合は、塊状となった固体粒子群がガス溜まりの蓋となり、間欠的なガス放出において必ずしも気泡を形成しない現象が、河田³⁻³⁾の実験で観察されている。

このように粒径が砂礫の境界から大、または小に大きく外れるような層では、気泡形成挙動はガスみち形成によるものとはまた異なるメカニズムにしたがうため、本研究で主に扱った粒径における挙動と同一軸での解釈は困難となる。

【参考文献】

- 3-1) Berg, R.R., 1975. Capillary pressures in stratigraphic traps. *AAPG Bull.*, 59, 939-956.
- 3-2) Domenico, P.A., Schwartz, F.W., 1997. Physical and chemical hydrogeology 2nd ed. John Wiley & Sons, Inc.
- 3-3) 河田諒, 2013. 砂状堆積物から漏出する気泡サイズ決定メカニズムに関する研究. H24年度東京大学工学部卒業論文.
- 3-4) Klusman, R.W., 2003. Rate measurements and detection of gas microseepage to the atmosphere from an enhanced oil recovery/sequestration project, Rangely, Colorado, USA. *Applied Geochemistry* 18 (12), 1825-1838.
- 3-5) Blackford, J., Stahl, H., Bull, J.M., *et al.*, 2014. Detection and impacts of leakage from sub-seafloor deep geological carbon dioxide storage. *Nature Climate Change* 4, 1011-1016.
- 3-6) Wentworth, C.K., 1922. A Scale of Grade and Class Terms for Clastic Sediments. *J. Geology* 30(5), 377-392.
- 3-7) Loimer, T., Machu, G., Schafflinger, U., 2004. Inviscid bubble formation on porous plates and sieve plates. *Chem. Eng. Sci.* 59, 809-818.
- 3-8) Formation of Bubbles through Non-circular Orifices, 1963. Krishnamurthi, S., Kumar, R., Datta, R.L. *Indian J. Technol.*, 2, 3-6.
- 3-9) Kumar, R., Kuloor, N.K., 1970. The Formation of Bubbles and Drops, *Adv. Chem. Eng.*, 8, 255-368.
- 3-10) 鈴木道隆, 八木章, 渡辺球夫, 大島敏男, 1984. 3成分球形粒子ランダム充填層の空間率の推定. 化学工学論文集, 10, 721-727.
- 3-11) Gostiaux, L., Gayvallet, H., Gérminard, J-C., 2002. Dynamics of a gas rising through a thin immersed layer of granular material: an experimental study. *Granul. Matter* 4, 39-44.

4. 結論

本研究では地球温暖化対策技術として重要視される CCS に関し、我が国で主要な選択肢となる海底下貯留における CO₂ 漏出を想定して、その影響評価に係る気泡形成挙動の重要性に着目した。未固結海底堆積物中の砂礫粒子 - 水 - ガスの固気液三相流動の再現とガスみち・気泡形成に与える影響の解明に資するため、三次元固気液三相流動シミュレータを開発することを目的とし、さらに開発したシミュレータを用い、固結・未固結層におけるガス侵入と気泡形成挙動シミュレーション、および未固結層における気泡形成挙動に係る流量、間隙率、粒径のパラメタスタディを行った。以下に、各章の結論をまとめる。

第2章の「LBM-DEM 連成による固気液三相流動シミュレータの開発」では、気液二相流系 LBM と固体相互作用を解析する DEM を連成し、本研究の目的である固気液三相流動を解析する三次元シミュレータを開発した。シミュレータ要件として砂礫粒子と低粘性の二相流体を解析可能とし、将来の並列化を視野に入れたアルゴリズム構築を行った。また、開発したシミュレータを用いて基礎的な物理現象の再現により検証を行った。即ち、流体 - 固体間の相互作用として 1) 単相一様流中の球にかかる抗力、気液間の相互作用として 2) 静止水中の気泡上昇、固気液三相間の相互作用として 3) 円筒における毛管圧のシミュレーションを行い、いずれも対象条件において理論・経験式と良好な合致が得られることを確認した。

第3章の「未固結層における気泡形成シミュレーション」では、開発したシミュレータを用いて、海底堆積層表層のガス溜まり上に薄い砂礫層が乗っているというケースを想定した、未固結層を通じたガスみち・気泡形成シミュレーションのケーススタディを実施し、固気液三相流動の与える影響を調べた。始めに、固結層と未固結層におけるシミュレーション結果を比較し、気泡形成挙動の差異を示した。シミュレーションの結果、同じ粒径・間隙率を有する層でも固結層では間隙スロートにおける毛管圧によってガス

の進入が抑制され、スレッシュホールド圧を超えた場合は間隙孔から小さめのばらつきが少
ない気泡を形成した。一方、本研究で設定した未固結層ではスレッシュホールド圧より低い
圧力で粒子の再配置が起こり、時には粒径よりも大きなガスみちを形成してガスの進入
が進み、形成される気泡も大きくなる傾向にあると同時にばらつきが生じた。想定した
ケースは必ずしも一般的な場合とは言えないものの、海底下 CO₂ 貯留の漏出において
も、未固結の海底堆積物を通じて漏出する気泡形成挙動は、ガスみちの形成により固結
した多孔質媒体を通じたものとは大きく異なる可能性が示唆された。続いて、本研究で
想定したガス溜まりの上の薄い砂礫層について、その層厚がガスみち形成に与える影響
を調べた。その結果、本研究の周期性の残る充填状態では、極端に薄い層ではガスみち
大きくつながった状態のまま表層へ到達しブレイクスルーを起こしたが、層厚が増加す
ると表層まで維持され貫通するガスみちのサイズは大きく変わらなくなる結果となっ
た。さらに、未固結層における 1) 流量、2) 間隙率、3) 粒径の各パラメタについてパ
ラメタスタディを行い、それぞれのパラメタが与える影響を調べ、本研究で想定した条
件下での未固結層の気泡形成メカニズムを考察した。シミュレーションの結果では、形
成されるガスみちの大きさは単位面積あたり流量の大きさによらず、間隙率や粒径の影
響が大きいことが示された。またガスみちが形成された際の気泡形成挙動は、円筒ノズ
ルからの気泡形成挙動に類似することが認められた。ただし、本研究の計算条件下では、
未固結層中において形成されたガスみちの断面形状は円形よりもスリット状のものが
多く、形成される気泡の大きさに影響を与えていることが示唆された。ガスみちのサイ
ズのみならず形状も流量、間隙率、粒径、固体粒子の充填状態といったパラメタが影響
してくる可能性があり、気泡形成に対する影響とともに今後の更なる検討が必要である。
また本研究では粒径の影響を均一な層で検討したが、室内実験との比較から層の粒径分
布がガスみち・気泡形成挙動に影響を与える可能性が示唆された。

以上の結果は極粗粒砂に分類される粒径 1.2 - 2.0 mm における挙動であるが、細礫と

中礫の境となる粒径 4.0 mm の層を用いたシミュレーション結果では、流入したガスは明確なガスみちをつくらず、全体的に進入して粒子層表面に到達し、個々の気泡というよりはブルームを形成した。また、より小さい 0.25 - 0.60 mm 程度の粒径の層では、砂が塊状で挙動して、その塊状となった砂粒子群がガス溜まりの蓋のような役割を果たし、ガスの放出は間欠的に起こり、必ずしも気泡を形成しないことが河田^{4,2)}の実験で示されている。これらのような粒径が砂礫の境界から大きくずれる粒子層では、気泡形成挙動はまた異なるメカニズムにしたがうため、オリフィス理論とは違ったアプローチが必要であることが確認された。

以上より、本研究では未固結層を通じたガスみち・気泡形成挙動を予測する三次元固気液三相流動シミュレータを開発し、固気液三相流動がガスみち・気泡形成挙動に与える影響について、ある計算条件のもとにケーススタディを行った。その結果、未固結層における気泡形成挙動はガスみちが形成されることにより、固結多孔質媒体におけるものとは大きく異なるものとなることが示唆された。また、間隙率・粒径といったパラメータがガスみちの形成サイズに影響を与え、形成されたガスみちによる気泡形成挙動は、円筒ノズル理論と一定の類似を示すことが示唆された。これらのことは本研究で想定した条件下における考察であり、特異なガスみち断面形状や分布を有しない均一粒径層の影響が考えられるが、海底下貯留 CO₂ の漏出において、未固結海底堆積物層中で円筒ノズル状のガスみちが形成されるような場合には、いっそうの理論との類似が予測される。また、海底下貯留 CO₂ の漏出において想定されるガス速度では、形成される気泡径が流量ではなく、ノズル径に依存する準定常状態のレジーム下にある可能性が高く、間隙率や粒径による形成されるガスみちのサイズの差異が、放出される気泡サイズにも影響を及ぼすことが推測される。

今後の課題としては、先に述べたようなガスみち形状およびそれに伴う気泡形成挙動に対する影響についての検討や、円筒ノズル理論とはメカニズムの異なる粒径における

挙動の解析が求められる。また本研究で開発したシミュレータの適用範囲を拡大するために、数値モデルの高速並列化を進めると共に、本研究で示唆された未固結層中のガスみち形成による気泡形成挙動を貯留層スケールで評価するためのパラメタ化や、モデルのアップスケールリングについて検討する必要がある。更には海底下貯留 CO₂ の漏洩に係る問題として、堆積物表面のみならず地層中の未固結層におけるガスみち形成、およびそれに伴う浸透性の変化へのモデル適用などが挙げられる。

謝辞

本論文は、筆者が東京大学大学院新領域創成科学研究科海洋技術環境学専攻博士課程において実施した研究をまとめたものです。本研究を実施するにあたり、同専攻の佐藤徹教授には指導教員ならびに主査として終始懇切なるご指導ご鞭撻を賜りました。心より感謝を申し上げます。また、環境システム学専攻の徳永朋祥教授、海洋技術環境学専攻の尾崎雅彦教授、多部田茂教授、平林紳一郎講師には副査として、本論文の改善に貴重なご指導ご助言をいただきましたことに御礼申し上げます。また、海洋技術環境学専攻環境モデリング統合学研究室の大山裕之助教、吉田毅郎博士には活発なる議論とコミュニケーションにおける多くのご助言ご協力をいただきました。ここに御礼申し上げます。

また社会人博士として職場である産業技術総合研究所 地質調査総合センター 地圏資源環境研究部門の中尾信典部門長、徂徠正夫 CO₂ 地中貯留研究グループ長、西祐司博士、石戸経士博士の諸氏には多岐にわたるご配慮と研究に対するご指導ご協力いただきましたことに深く感謝の意を表します。