

東京大学大学院新領域創成科学研究科  
環境システム学専攻

2018 年度

修士論文

二酸化炭素マイクロバブル地中貯留における

二酸化炭素の挙動に関する研究

2019 年 2 月 21 日提出

指導教員 愛知 正温 講師

森川 慎也

## 要旨

本研究の目的は、二酸化炭素マイクロバブル地中貯留(CMS)を行うにあたって必要となるシミュレーションの計算負荷軽減および信頼性向上のために、実験的手法を用いて CO<sub>2</sub> 溶解水の挙動を無次元数によって分類することである。

地下における CO<sub>2</sub> 溶解水の挙動を再現する為に、BTB 溶液とガラスビーズで満たされた水槽内に、マイクロバブル発生器によって作られた CO<sub>2</sub> 溶解水の注入が行われた。注入中および注入後の CO<sub>2</sub> 溶解水の挙動が水平方向の移流によってどのように変化するか観察が行われた。また、実験でフィンガリングが発現したときと同じ条件を Dtransu において再現し、実験結果との比較を行った

実験の結果、 $\pi_1 = 1.3$ を境界としてそれより大きい範囲ではフィンガリングの様子が見られ、それより小さい範囲ではフィンガリングの様子が見られなくなった。本研究で得られた境界値は、先行研究で得られたものと異なるものであったが、これは本研究で扱った密度差の範囲が、先行研究のものと比較して小さかったためだと考えられる。

シミュレーション結果と実験結果の比較では、シミュレーションによりフィンガリングを再現するに至らなかった。このことから、密度差の小さい領域における正確なシミュレーションの困難さが示唆された。

本研究では、比較的低濃度な CO<sub>2</sub> 溶解水に関して、水平方向の移流と密度差および透水係数による挙動の変化を無次元数によって分類することに成功した。しかしながら同時に、密度差の変化が、流動状態の変化の境界となる無次元数の値に影響を与えることが示唆されたため、シミュレーションの計算負荷軽減および信頼性向上のためには、更なる実験によるデータ収集が必要となると考えられる。

## 目次

1. 序論 .....	3
1.1 背景 .....	3
1.1.1 気候変動とその影響および将来予測 .....	3
1.1.2 地球温暖化の原因 .....	3
1.1.3 将来予測 .....	3
1.2 CCS および CMS .....	4
1.2.1 CCS の概要及び種類と機構 .....	4
1.2.2 CCS の現状 .....	7
1.2.3 二酸化炭素マイクロバブル地中貯留(CMS) .....	8
1.2.4 CCS の位置付け .....	9
1.3 先行研究 .....	9
1.3.1 マイクロバブルの効果 .....	9
1.3.2 地中注入後の CO <sub>2</sub> の挙動 .....	10
1.3.3 レイリー・テイラー不安定性 .....	12
1.3.4 地下水流と物質移動 .....	14
1.4 研究目的 .....	19
1.4.1 CMS に関する課題 .....	19
1.4.2 研究目的 .....	20
2.1 水槽を用いた CO <sub>2</sub> 溶解水の挙動の観察 .....	21
2.1.1 実験装置 .....	21
2.1.2 透水係数測定実験 .....	22
2.2 Dtransu を用いたシミュレーションと実験結果の比較 .....	25
2.2.1 Dtransu の概要 .....	25
2.2.2 実験及びシミュレーション条件 .....	29
3. 実験結果 .....	32
3.1 水槽を用いた、CO <sub>2</sub> 溶解水の注入後の挙動の観察 .....	32
3.2 実験結果と Dtransu によるシミュレーション結果の比較 .....	42
4. 考察 .....	46
4.1 CMS の実現可能性に関する考察 .....	46
4.2 無次元数 $\pi_1$ による流動状態の分類 .....	46
4.3 Oostrom らの実験結果との比較 .....	48
4.4 実験結果と Dtransu によるシミュレーション結果の比較 .....	48
5. 結論および今後の展望 .....	50

謝辭.....	51
参考文献 .....	52

# 1. 序論

## 1.1 背景

### 1.1.1 気候変動とその影響および将来予測

2014年作成の、IPCC(気候変動に関する政府間パネル)第5次評価報告書は、地球上の平均気温の変化に関して以下のような報告をしている。

- ・陸域と海上を合わせた世界平均気温は1880年から2012年の間に0.85°C上昇した。<sup>1)</sup>
- ・地球の表面では最近30年間の各10年はいずれも、1850年以降の各々に先立つどの10年間よりも高温であり続けた。<sup>1)</sup>

また、同報告書によると、気候システムに蓄積されたエネルギーの中でも海洋に蓄積されたエネルギー量は卓越しており、1971年から2010年の間に蓄積されたエネルギーの90%以上を占める<sup>1)</sup>という。その結果として、海の上層(0~700m)において、0.1~0.3°C程度の水温の上昇が観測されている<sup>1)</sup>。さらに、海洋は排出された人為起源の二酸化炭素の約30%を吸収し、それによって海面付近の海水のpHが工業化時代の始まり以降0.1低下している<sup>1)</sup>と指摘している。海洋の温度上昇が起こると褐虫藻がサンゴから抜け出し、サンゴが死滅するなどの悪影響をもたらす。また、氷雪圏における氷床の減少も発生しており、同報告書では、高い確信度で過去20年間にわたり、グリーンランド及び南極の氷床の質量が減少しており、氷河が世界中で縮小し続けている<sup>1)</sup>と述べられている。以上のことを踏まえて同報告書は、気候システムの温暖化には疑う余地はない<sup>1)</sup>と結論付けている。

### 1.1.2 地球温暖化の原因

IPCC第5次評価報告書は、全太陽放射照度の衛星による直接測定結果に基づくと、1986年から2008年の期間の世界平均気温の上昇に、全太陽放射照度の変化が寄与していなかったことの確信度が高いことを踏まえたうえで、20世紀半ば以降に観測された温暖化は、人間の影響が支配的であった<sup>1)</sup>と述べている。温暖化の要因については、放射強制力の合計が正であるために気候システムによるエネルギーの吸収が起きている<sup>1)</sup>と指摘しており、合計放射強制力に最大の寄与をしているのは1750年以降の大気中の二酸化炭素濃度の増加である<sup>1)</sup>と述べている。以上のことを踏まえて、地球温暖化の原因に関して、人間の影響が20世紀半ば以降に観測された温暖化の支配的な要因であった可能性が極めて高い<sup>1)</sup>と結論付けている。

### 1.1.3 将来予測

IPCC第5次評価報告書は、将来の世界平均気温の変化について複数のシナリオを作成している。CO<sub>2</sub>等の排出を抑えないと仮定するシナリオでは、2100年までの気温上昇は2.6~4.8°Cに達する<sup>1)</sup>とされている。また、最も温暖化を抑えた場合でも0.3~1.7°Cの気温上

昇が見込まれるとしたうえで、どのようなシナリオを当てはめても、21世紀末の気温は現在(1986~2005年)よりも上昇する<sup>1)</sup>としている。また、海面水位については、21世紀の間世界の海面水位は上昇するだろう<sup>1)</sup>と予測しており、同時に海洋による炭素貯留が進行することで海洋の酸性化が起こることはほぼ確実である<sup>1)</sup>と述べている。仮に同報告書で予想される最大の海面上昇が起こるとすれば、日本では大阪・神戸、名古屋、東京・横浜といった大都市圏において、ゼロメートル地帯の面積が5割上昇する<sup>1)</sup>と考えられている。また、同報告書では、新たな見解として二酸化炭素の累積排出量と世界平均地上気温の応答はほぼ比例関係にあると述べており、人為的な二酸化炭素排出量のみによる温暖化を、1861~1880年の平均から66%超の確率で2°C未満に抑えるための目標として、二酸化炭素の累積排出量を約790GtCにとどめる必要がある<sup>1)</sup>としている。

## 1.2 CCS および CMS

### 1.2.1 CCS の概要及び種類と機構

これらの事実を背景として、先進国を中心にCO<sub>2</sub>排出量削減のために様々な取り組みがなされてきた。例えば、省エネ製品を普及されることや、再生可能エネルギー利用割合を拡大させることで、従来よりも二酸化炭素の排出量を減らそうとする試みは、地球温暖化が問題視されて以降世界中で行われてきた。それらの取り組みの中でも、CO<sub>2</sub>排出量を直接削減することが出来る手法の一つとして近年注目されているのがCCS(Carbon dioxide Capture and Storage, 二酸化炭素・回収貯留技術)である。

CCSとは、大気中に存在するCO<sub>2</sub>もしくは火力発電所などの人為的排出源から排出されるCO<sub>2</sub>を分離・回収・輸送し、地中や海洋などに長期的に貯蔵し、大気から隔離することでCO<sub>2</sub>の排出を抑制しつつ、中・長期的に化石燃料の利用を可能とする技術オプションである<sup>2)</sup>。図1.1に種々のCCS実施方法を示す。

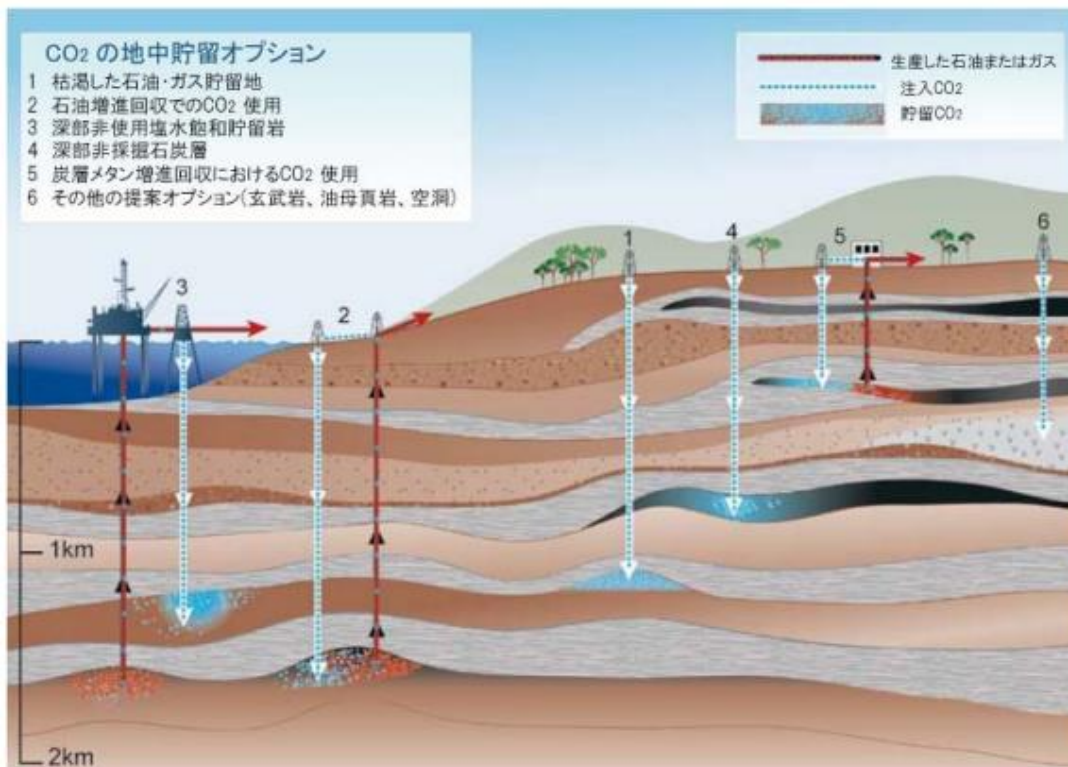


図 1.1 種々の CCS 実施方法<sup>3)</sup>

図 1.1 に示された種々の実施方法について述べる。

①の枯渇した石油・ガス貯留地への貯留は、枯渇油田や枯渇ガス田に二酸化炭素を貯留する方法である<sup>4)</sup>。このような貯留先は地中の微細な孔隙に原油や天然ガスといった浮力を持つ流体が長期間にわたって貯留されていたという事実から、非常に安定的な貯留先であると考えられている<sup>4)</sup>。この方法により、石油や天然ガス由来のCO<sub>2</sub>を貯留するだけの貯留量が確保できると考えられているが、石炭の燃焼により排出された分のCO<sub>2</sub>を考慮すると排出量が貯留可能量を超過してしまうと考えられるため、他の貯留先の確保が求められる<sup>4)</sup>。

②の石油増進回収でのCO<sub>2</sub>使用は、石油増産のためにCO<sub>2</sub>を地下に圧入するものであり、1970年以降にアメリカやカナダなどで盛んに行われてきた<sup>4)</sup>。日本でも、1990年代前半に当時の帝国石油(株)が新潟県の頸城油田で、1990年代後半には石油資源開発(株)が秋田県の申川油田において実施しており、技術的な裏付けのとれた貯留方法であるといつてよい<sup>4)</sup>。しかしながら、①や②に示した方法では、地下へのCO<sub>2</sub>貯留量が不足すると考えられていたため、1992年の国際会議で、更なる貯留先として深部非使用塩水飽和貯留岩(Deep unused water-saturated reservoir rocks)の利用が提唱された<sup>4)</sup>。この方法は、地下水資源として利用されることのない、塩水帯水層をCO<sub>2</sub>の貯留先として利用するという考え方であるが、地下においてCO<sub>2</sub>は超臨界状態となるため、浮力により二酸化炭素は上方への駆動力を持つことになる<sup>4)</sup>。従って、注入した二酸化炭素の漏洩を防ぐためのトラップメカニズムが必要と

なる<sup>4)</sup>。CCSにおいて、トラップとして機能すると考えられているメカニズムと貯留期間の関係を図1.2に示す

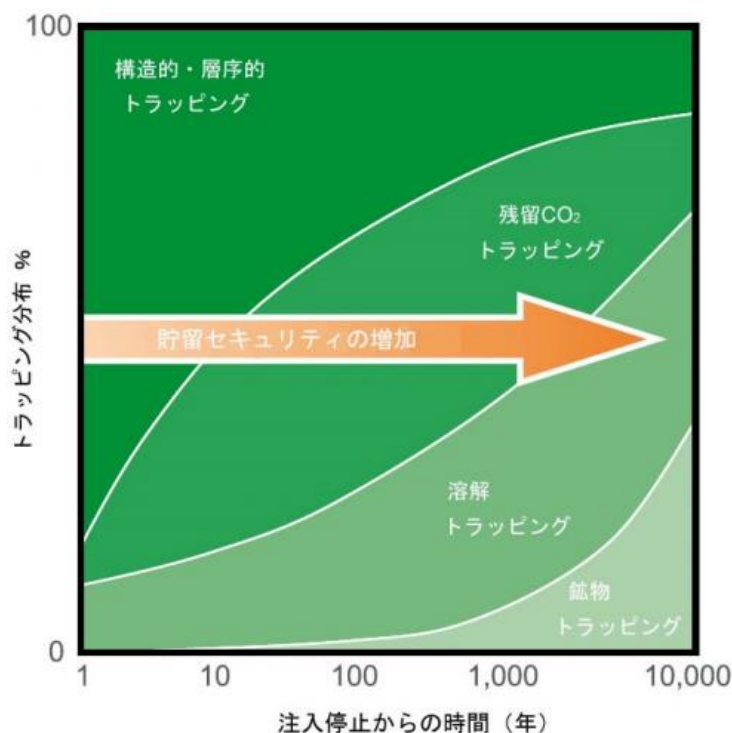


図 1.2 トラッピングの種類と貯留期間の関係<sup>3)</sup>

図 1.2 に示したトラッピングの種類のうち、重要であるものをいくつか取り上げて述べる。注入後短期間に重要となるトラッピング機構は、構造・層序的トラッピングである<sup>4)</sup>。これは、浸透率の低い頁岩などのキャップロックが上方に存在することにより、CO<sub>2</sub>の漏洩が防がれるという機構である。CO<sub>2</sub>を超臨界状態で注入する場合、超臨界状態のCO<sub>2</sub>は地下水よりも密度が小さいため、CO<sub>2</sub>の浮上による漏洩を防ぐためにはキャップロックが必要不可欠となる。従って、一般的な CCS において注入直後最も重要となるのは、このトラッピング機構である。注入後比較的早い段階から、長期にわたって重要となるのが溶解トラッピングである<sup>4)</sup>。これは、地下水中にCO<sub>2</sub>が溶解することによって浮力を持たなくなることで貯留されるトラッピング機構である<sup>4)</sup>。CO<sub>2</sub>の溶解後においても、地下水が地上に流出することによってCO<sub>2</sub>が漏洩するリスクは残されているものの、CO<sub>2</sub>が地下水に溶解してしまえば、溶解水は周囲よりも密度が高い状態となるため下方への駆動力が働き、超臨界状態よりも高い確度で長期間の貯留が可能になると考えられる。その後、地下水中に溶解したCO<sub>2</sub>の一部は、ほぼ永久的な地中貯留の形である安定した炭酸塩化合物に変換される<sup>3)</sup>と考えられている。さらに、これらの鉱物の崩壊により新しい炭酸塩鉱物が沈殿し、注入されたCO<sub>2</sub>は最も安全な状態で固定されるようになると考えられている<sup>3)</sup>。



## 1.2.2 CCS の現状

最初に帯水層への CCS の商業的プロジェクトが行われたのは、1996 年にノルウェーで行われた Sleipner プロジェクトである<sup>3)</sup>。当該プロジェクトの概念図を図 1.3 に示す。

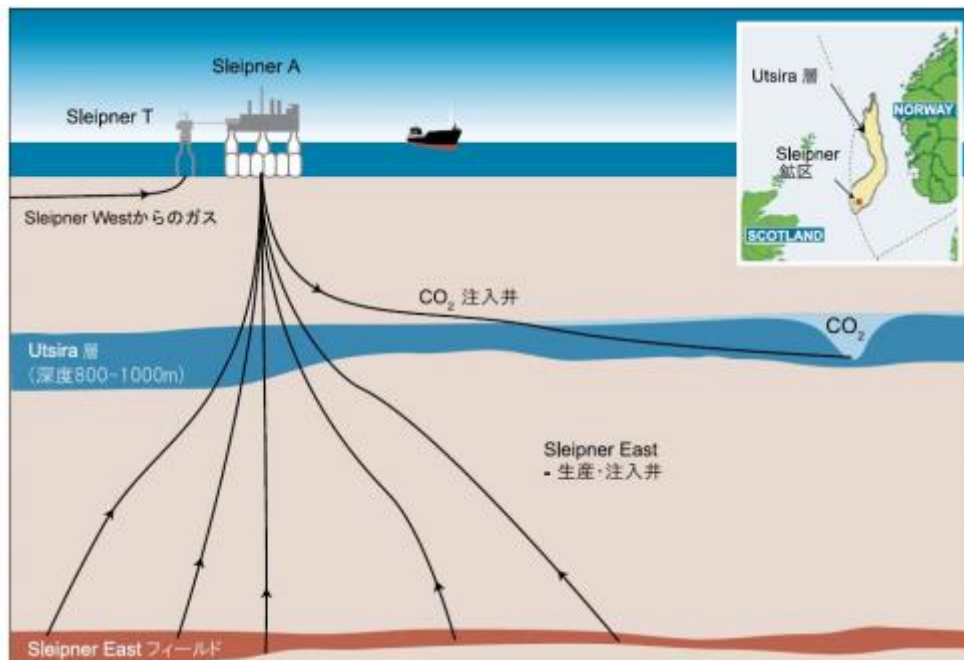


図 1.3 Sleipner プロジェクトの概念図<sup>3)</sup>

Sleipner プロジェクトは、ノルウェー沿岸から 250 km 離れたところで行われる、塩水層への CO<sub>2</sub> 注入に専念する初の商業規模プロジェクトである<sup>4)</sup>。Sleipner ガス田から得られるガスから分離された CO<sub>2</sub> は、深度 800~1000 m に存在する深部塩水層に貯留される<sup>3)</sup>。注入作業は 1996 年 10 月に開始され、2005 年初めまでに 7Mt 以上の CO<sub>2</sub> が約 2700t/day の速度で注入された<sup>3)</sup>。日本では、北海道苫小牧市において、製油所から排出される CO<sub>2</sub> ガスの貯留が 2016 年 4 月より開始された。日本 CCS 調査株式会社は、発電所や工場などの排出源を対象として 2020 年頃には CCS を実用化することを目指している。ところで、図 1.4 は RITE の発表した日本における帯水層貯留のポテンシャルマップである。

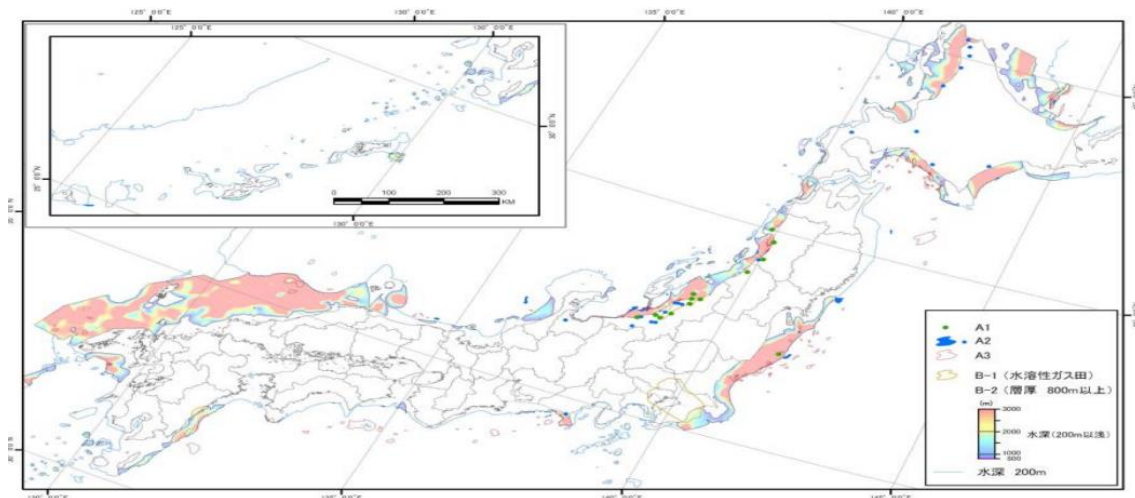


図 1.4 日本における CO<sub>2</sub> 帯水層貯留のポテンシャルマップ<sup>5)</sup>

図 1.4 が示すように、日本において CO<sub>2</sub> 帯水層貯留が実施可能な地域は偏在しており、必ずしも火力発電所等の大規模排出源の周辺に存在するわけではない。CO<sub>2</sub> の輸送に関してはパイプラインを用いた方法などが検討されているが、排出源と貯留地の距離が大きくなればなるほど CCS にかかる輸送コストは増大するため、貯留可能地域の偏在性は CCS を行う上での一つの問題点である。従って、広範な地域で行える CCS の手法を開発することは、CCS の低コスト化に貢献すると考えられる。また、CCS を実施する際には、注入前に CO<sub>2</sub> を分離し、純粋な CO<sub>2</sub> を得る必要がある。現在は主に化学吸収法と呼ばれる方法が用いられているが、CCS を行う上では全体のコストに対し、CO<sub>2</sub> の分離コストが 7 割を占めているとの試算もある<sup>6)</sup>。

### 1.2.3 二酸化炭素マイクロバブル地中貯留(CMS)

二酸化炭素マイクロバブル地中貯留(CMS)は、地上または注入井内で地下水中に CO<sub>2</sub> マイクロバブルを圧入して溶解水を貯留層に貯留する方法である<sup>7)</sup>。CMS は、二酸化炭素を超臨界状態で地中に注入する場合と異なり、注入した二酸化炭素に浮力が働かず、逆に周辺の地下水よりも注入した二酸化炭素溶解水の方が周囲と比較して密度が大きいため、二酸化炭素の漏洩リスクが低いと考えられている。また、二酸化炭素溶解水はキャップロックが存在しなくても自然に沈降することが予測されることから、キャップロックの存在しない地域においても CCS が行えるようになることも期待される<sup>7)</sup>。従ってこの手法は、広範な地域での CCS 実施を可能にすることで、先に述べた CCS における二酸化炭素の輸送コストを低減し、世界中でより大規模な CCS を行えるようにする可能性を持つものとする。また、二酸化炭素を溶解した状態で地中に注入するという特質上、図 1.2 で述べた種々のトラップのうち、構造トラップおよび残留 CO<sub>2</sub> トラップを経ることなく直接溶解トラップを利用することになるので、最も安定した貯留が行えると考えられる、鉱物トラップに移行

するまでの時間が短くなると考えられる。このことから、二酸化炭素マイクロバブル地中貯留は、超臨界状態の二酸化炭素を注入する場合と比較して、注入した二酸化炭素がより早く鉱物となるために、より早く安定的な状態に移行すると考えられる。

#### 1.2.4 CCS の位置付け<sup>3)</sup>

世界的に地球温暖化が問題視されはじめてから現在までに、様々な CO<sub>2</sub> 削減策が行われてきた。例えば日本においては、2009 年 5 月 15 日から 2011 年 3 月 31 日までに一定以上の省エネ性能を持つ家電を購入した消費者にエコポイントを進呈するという、家電エコポイント制度と呼ばれる政策が実施された。IPCC 特別報告書によると、世界中での地中貯留の技術的ポテンシャルは、66~90%の確率で、約 2,000 GtCO<sub>2</sub> であり、極めて大きいと推定されている<sup>3)</sup>。一方で、CCS による CO<sub>2</sub> 削減は、他の CO<sub>2</sub> 削減策と比較して大きなエネルギーロスを伴うことが予測されているため、長期的に持続可能な方法で大幅削減を可能にする唯一の技術とは言えない<sup>3)</sup>とされている。しかし、前述のような大きなポテンシャルを持つことを考慮すると、CCS は将来の革新的な対策技術の出現に至るまでの、大気中 CO<sub>2</sub> 濃度安定化のための、「つなぎ」の技術としての位置づけることができる<sup>3)</sup>と考えられている。

それに加えて、CCS は地球の炭素循環をコントロールするという観点においても、重要な意義を持つ技術であると考えられる。地上および地中に存在する炭素原子のバランスを考えたときに、宇宙空間に放出される分が無視できるほど小さいとすると、地中と地上の間で炭素原子のやり取りが行われていると考えることができる。例えば自然界においては、地中からは分解者の働きによって CO<sub>2</sub> が地上に排出され、その CO<sub>2</sub> を植物が光合成によって固定化し、その植物が死亡することによって再度炭素原子が地中に戻るという循環が行われている。しかしながら、人類が化石燃料を大量に消費するようになって以来、化石燃料の形で地中深部に眠っていた炭素原子が、大量に地上に放出されるようになった。このようにして大気中に放出された炭素が元と同じ形で地中深部に戻るには、化石燃料が生成される時と同じ時間経過が必要となるため、それまでの期間においては地上に存在する炭素量が増加した状態となる。すなわち、一時的に大気中の CO<sub>2</sub> 濃度を減らすという目的は植林などによって果たせるが、化石燃料の燃焼によって地上に増えた炭素を再び地中深くに戻すという観点においては、コストの問題はあるにせよ CCS を実施することに一定の意義があると考えられる。

### 1.3 先行研究

#### 1.3.1 マイクロバブルの効果

二酸化炭素を溶解させる際にマイクロバブルを用いた場合と、粒径の大きなバブルを用いて行った場合の比較が、宮澤ら<sup>8)</sup>によって行われている。宮澤らは、脱イオン水と地下水のそれぞれに対して、CO<sub>2</sub> ガスボンベから直接 CO<sub>2</sub> ガスを溶解させる方法(以下バブリング法とする)と、マイクロバブル発生装置により CO<sub>2</sub> をマイクロバブルとして溶解させる方法

の両方について、CO<sub>2</sub> 溶解試験を行った。図 1.5 はその CO<sub>2</sub> 溶解試験の結果であり、横軸がバブリングおよびマイクロバブル発生開始からの経過時間、縦軸が水中の CO<sub>2</sub> 濃度を示している。米印プロットのうち色の濃いものは脱イオン水に対してマイクロバブルを発生させた場合、色の薄いものはバブリング法によって CO<sub>2</sub> を溶解させた場合である。また、丸印プロットは、地下水に対して CO<sub>2</sub> マイクロバブルを発生させることで CO<sub>2</sub> 溶解水を作成した際の CO<sub>2</sub> 濃度変化である。

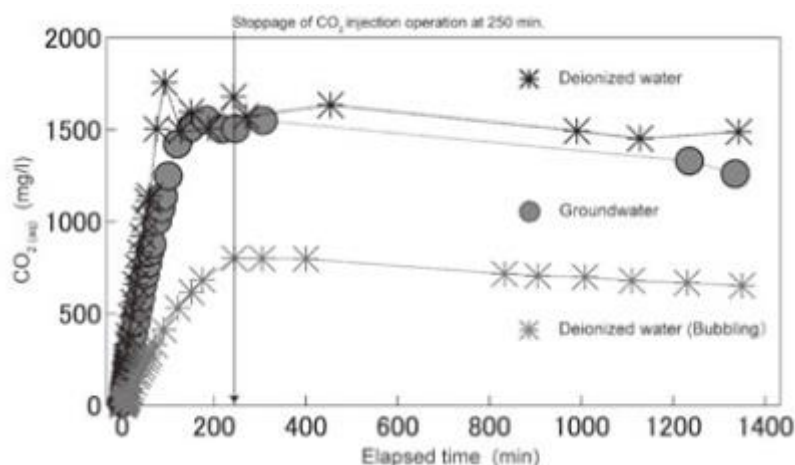


図 1.5 CO<sub>2</sub> 注入開始からの経過時間と CO<sub>2</sub> 濃度の関係<sup>8)</sup>

図 1.5 から、バブリング法においては、1000 分以上注入を行っても CO<sub>2</sub> 飽和溶解水が得られないのに対し、CO<sub>2</sub> をマイクロバブルとして溶解させる方法は、注入後 200 分経過時点で既に CO<sub>2</sub> 飽和溶解水が得られていると分かる。マイクロバブルを利用することで、より大きなバブルとして溶解させる場合と比較して早く CO<sub>2</sub> 飽和溶解水が得られること的主要要因としては、CO<sub>2</sub> バブルの粒径が小さければ小さいほど、水と CO<sub>2</sub> バブルの界面の面積が大きくなることが挙げられる<sup>8)</sup>。CMS において CO<sub>2</sub> を溶解状態で地中に注入する場合、マイクロバブルを使用することで、通常バブリングによって行った場合より時間的にも量的にも質の高い注入が可能であると考えられる。

### 1.3.2 地中注入後の CO<sub>2</sub> の挙動

CMS における貯留後の CO<sub>2</sub> の挙動に関して、詳細に検討を行った論文は多くないが、CO<sub>2</sub> を超臨界状態で地中に注入した場合について、注入後の CO<sub>2</sub> の溶解および溶解後の挙動のシミュレーションを行った研究は数多く報告されている。例えば、株式会社大成建設の山本肇らは、均質モデルを用いたシミュレーションが CO<sub>2</sub> の地下水への貯留の安定性を、正しく評価できない<sup>9)</sup> ということを指摘している。また CO<sub>2</sub> が地下水に溶解したのちの挙動について正確なシミュレーションを行うためには、cm オーダー以下のごく微細な計算格子を必要とする<sup>9)</sup> と述べている。CMS において CO<sub>2</sub> を飽和水溶液として注入する場合は、超臨界状態で注入する場合とは異なり、CO<sub>2</sub> の地下水に対する溶解プロセスがないなどの違い

はあるものの、CMS においても注入後の CO<sub>2</sub> 挙動を正確に予測するためには、同程度に微細な計算格子が必要となると考えられる。以下に、山本らが行った CO<sub>2</sub> の地下挙動のシミュレーション結果を示す。

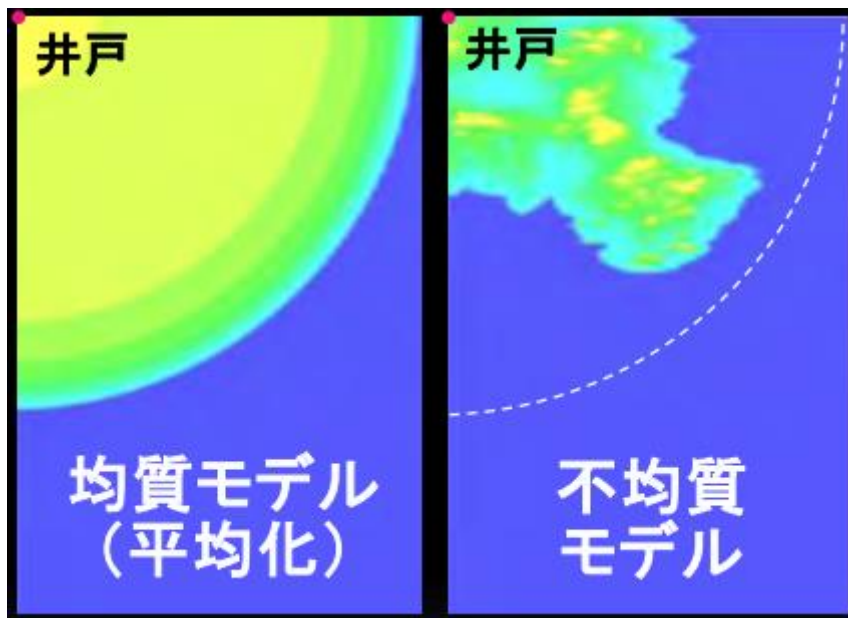


図 1.6 モデルの違いによる CO<sub>2</sub> 挙動の差異<sup>9)</sup>

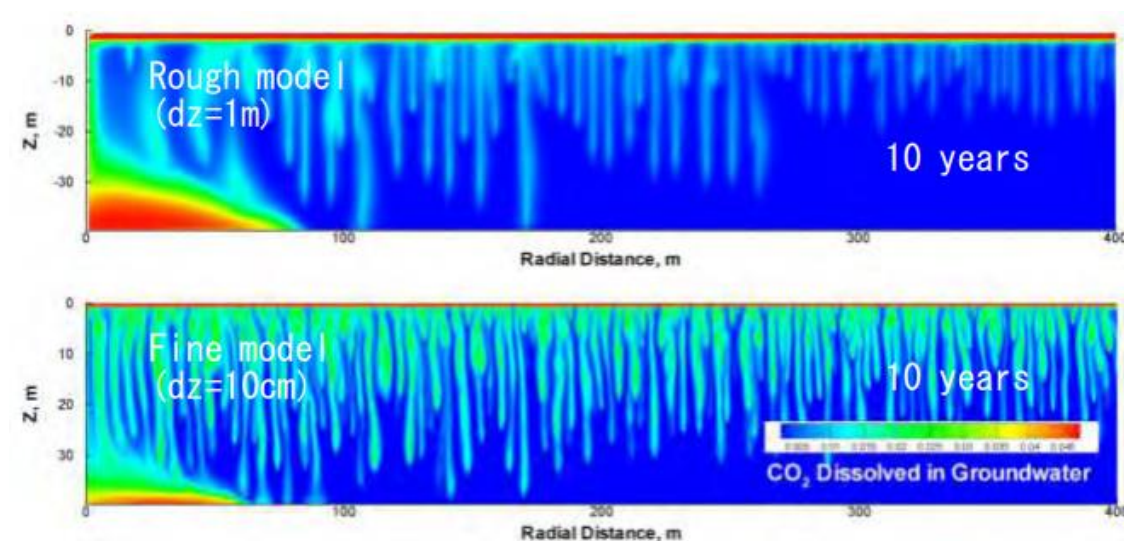


図 1.7 格子の大きさによる地下水に対する CO<sub>2</sub> 溶解量の差異<sup>9)</sup>

図 1.6 は、井戸の位置から CO<sub>2</sub> を注入した場合、貯留槽上面における CO<sub>2</sub> プリュームの濃度変化を示している。山本らは、均質モデルにおいては、CO<sub>2</sub> プリュームの平面的広がり が過大評価され、CO<sub>2</sub> 溶解量が過小評価されている<sup>9)</sup>と指摘している。図 1.7 は、CO<sub>2</sub> 貯留層から CO<sub>2</sub> が溶解とともに沈降していく様子を示したものである。計算格子が 1 m 間隔のときと 10 cm 間隔のときを比較すると、10 cm 間隔においては CO<sub>2</sub> のより広範な拡散が見ら

れる。計算格子が 10 cm の場合にみられる CO<sub>2</sub> 溶解水の挙動は、レイリー・テイラー不安定性によるものである。

### 1.3.3 レイリー・テイラー不安定性<sup>10)</sup>

レイリー・テイラー不安定性とは、重力場など加速度下で2つの流体層が異なる密度を持つ場合、流体の不連続面で起こる特有の不安定性である。以下に、レイリー・テイラー不安定性について述べる。

粘性のない非圧縮性流体について、密度 $\rho$ と圧力 $P$ を $z$ 方向のみの関数だとする。ただし、 $z$ 方向を重力方向とする。任意の点 $(x,y,z)$ においての密度と圧力の変化 $\rho \rightarrow (\rho + \delta\rho)$ および、 $P \rightarrow (P + \delta P)$ を考える。そのとき、速度の微小変化の3成分を $(\delta u, \delta v, \delta w)$ と定義すると、連続の式は以下のようになる。

$$\frac{\partial \delta u}{\partial x} + \frac{\partial \delta v}{\partial y} + \frac{\partial \delta w}{\partial z} = 0 \quad \text{式(1.1)}$$

また、各方向成分の運動方程式はそれぞれ以下のようになる。

$$\rho \frac{\partial \delta u}{\partial t} = -\frac{\partial \delta p}{\partial x} \quad \text{式(1.2)}$$

$$\rho \frac{\partial \delta v}{\partial t} = -\frac{\partial \delta p}{\partial y} \quad \text{式(1.3)}$$

$$\rho \frac{\partial \delta w}{\partial t} = -\frac{\partial \delta p}{\partial z} - g \delta \rho \quad \text{式(1.4)}$$

また、流れに沿って非圧縮という条件から、

$$\frac{d\rho}{dt} = 0 \quad \text{式(1.5)}$$

であるから、

$$\frac{\partial \delta \rho}{\partial t} + w \frac{d\rho}{dz} = 0 \quad \text{式(1.6)}$$

である。ここで、 $\delta \rho \propto \exp[i(k_x x + k_y y) + \omega t]$ のように、 $x, y$ 方向に平面波となる摂動を考える。これを式(1.2)-(1.4)および式(1.6)に代入すると以下のようになる。

$$ik_x \delta p = -\omega \rho u \quad \text{式(1.7)}$$

$$ik_y \delta p = -\omega \rho v \quad \text{式(1.8)}$$

$$\frac{d\delta p}{dz} = -\omega \rho w - g \delta \rho \quad \text{式(1.9)}$$

$$ik_x u + ik_y v = -\frac{dw}{dz} \quad \text{式(1.10)}$$

$$\omega \delta \rho = -w \frac{d\rho}{dz} \quad \text{式(1.11)}$$

式(1.7)-(1.9)から、次式を得る。

$$(k_x^2 + k_y^2) \delta p = -\omega \rho \frac{dw}{dz} \quad \text{式(1.12)}$$

また、式(1.4)と式(1.6)より、

$$\frac{d\delta p}{dz} = -\omega \rho w + \frac{g}{\omega} w \frac{d\rho}{dz} \quad \text{式(1.13)}$$

を得る。式(1.12)と式(1.13)を用いて以下の式を得る。ただし、 $k^2 = k_x^2 + k_y^2$ である。

$$\frac{d}{dz} \left( \rho \frac{dw}{dz} \right) - \rho k^2 w = k^2 g \frac{w}{\omega^2} \frac{d\rho}{dz} \quad \text{式(1.14)}$$

式(1.14)は、スツルム-リュービュ型と呼ばれる微分方程式であり、

$$\frac{k^2}{\omega^2} \frac{d\rho}{dz} > 0 \quad \text{式(1.15)}$$

のときに解が存在し、境界条件に応じた固有値や固有関数を持つ。ここで、摂動は  $e^{\omega t}$  の時間依存性を持つと定義したので、 $\omega^2 < 0$  のときに振動する解となり、安定である。逆に、

$\omega^2 > 0$  のときは不安定となる。これがレイリー・テイラー不安定性と呼ばれる。 $d\rho/dz > 0$  が成立する場合、すなわち、流体の密度勾配が重力加速度と同じ方向ならば常にレイリー・テイラー不安定性が起こり、流体中のゆらぎが指数関数的に成長する。

具体的な場合として、流体の密度が一様な場合の分散関係を求める。鉛直方向に水平な境界面 ( $z = 0$ ) において、密度  $\rho_1 (z < 0)$  と、 $\rho_2 (z > 0)$  の流体が接している場合を考える。このとき、 $d\rho/dz = 0$  なので、式(1.14)より、

$$\left( \frac{d^2}{dz^2} - k^2 \right) w = 0 \quad \text{式(1.16)}$$

となり、一般解は任意の定数 A, B に対して、 $w = Ae^{kz} + Be^{-kz}$  である。しかし、境界面から遠く離れたときに鉛直方向の速度が小さくなるように、( $z \rightarrow \pm\infty$ ) のとき ( $w \rightarrow 0$ ) となる解を選択すると、領域 1, 領域 2 でそれぞれ、

$$w_1 = Ae^{kz} \quad \text{式(1.17)}$$

$$w_2 = Ae^{-kz} \quad \text{式(1.18)}$$

が解となる。さらに、境界面で解が接続する条件として、1)境界面  $z = 0$  を挟んで  $w$  と  $dw/dz$  が連続であること、2)境界面を挟んだ物理量の跳びが基礎方程式に従うことを課すと、式(1.14)の両辺を  $z = -\epsilon$  から  $z = +\epsilon$  まで積分した

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_{-\epsilon}^{\epsilon} \left( \rho \frac{dw}{dz} \right) dz = - \frac{k^2}{\omega^2} g(\rho_2 - \rho_1) w(0) \quad \text{式(1.19)}$$

が成立することが必要となる。ここで、 $w(0) \equiv dw/dz|_{z=0}$ である。この接続条件を解 $w_1$ および $w_2$ に適用すると、分散関係として次式を得る。

$$\omega^2 = gk \frac{\rho_2 - \rho_1}{\rho_2 + \rho_1} \quad \text{式(1.20)}$$

式(1.20)から、 $\rho_2 > \rho_1$ の場合、すなわち、密度の大きな流体が密度の小さな流体の上に存在している場合に $\omega$ は実数となり、境界面の  $e^{\omega t}$ に比例する微小なゆらぎは、その波長に関係なく指数関数的に成長して不安定となることがわかる。

上記の議論においては、流体境界面に発生する表面張力を考慮していないが、実際には流体の境界面が揺らぐときには表面張力が働く。従って、すべての波長の揺らぎが不安定化されるわけではない。この場合、不安定化される波数  $k$  の条件は、流体の種類などによって決まる定数  $T$  を用いて、

$$0 < k < \sqrt{(\rho_2 - \rho_1)g/T} \quad \text{式(1.21)}$$

と表されることが知られている。したがって、不安定化される揺らぎの波長に下限が存在することとなり、それ以下の波長をもつ揺らぎは安定化されることとなる。

以上の議論から、**CCS** や **CMS** を行う場合に必須となるであろう  $\text{CO}_2$  の地中における挙動の予測においては、レイリー・テイラー不安定性が注入した  $\text{CO}_2$  溶解水に与える影響をシミュレートできるように、十分に小さな計算格子を用いてシミュレーションを行うべきであるといえる。なぜなら、もし  $\text{CO}_2$  の溶解トラップを過小評価することがあれば、正確に評価した場合と比較して貯留サイトごとの  $\text{CO}_2$  圧入量が少なくなり、結果的に **CCS** および **CMS** の実施コストの増大につながるためである。

#### 1.3.4 地下水流と物質移動

**CMS** を行う場合、地中に注入された二酸化炭素の挙動に影響を与える要素として、以下の三つが考えられる。

1. 二酸化炭素溶解水と地下水の密度差
2. 地下水流れ
3. 溶解した二酸化炭素の拡散

このうち、1は二酸化炭素の安定的貯留を促す要素の一つである。注入した二酸化炭素溶解水が1による下降のみを行うのであれば、ほとんどの土地で**CMS**を行うことができるであろう。しかし、実際には2の地下水流れの影響を考慮しなければならない。地下水流れの存在する地域で**CMS**を行う場合、注入した二酸化炭素溶解水は1の影響によって沈降すると同時に、地下水流れに乗って移動すると考えられる。地下水流れがそれほど大きくない



場合は、1の影響が支配的となって二酸化炭素は全体的に沈降すると考えられるが、地下水流れが大きい場合は、2の影響が支配的となるために安定的貯留ができなくなる可能性がある。そのため、CMSを実施する際には、地下水の流れがCO<sub>2</sub>の挙動にどのような影響を与えるかを明らかにする必要があると考えられる。

実験装置を用いて多孔質媒体内における物質移動の様子を観察した研究は、地中における汚染物質の移動の研究として何人かの研究者により行われてきた。例えば、無次元数を用いて密度差や流速と物質移動の様子を明らかにするための研究が、1992年にOostromらによって行われている<sup>11)</sup>。彼らは、ガラスビーズや砂岩で満たした水槽を水で飽和させ、以下のような実験装置を作成した。彼らは、実験装置左上から汚染物質を模した試薬を溶解させた、色付きの液体を流し込むと同時に、装置内に左方から右方への水流を起こし、高密度の流体が低密度の流体の上に存在する場合の挙動が、多孔質媒体における水流によってどのような影響を受けるか観察した。

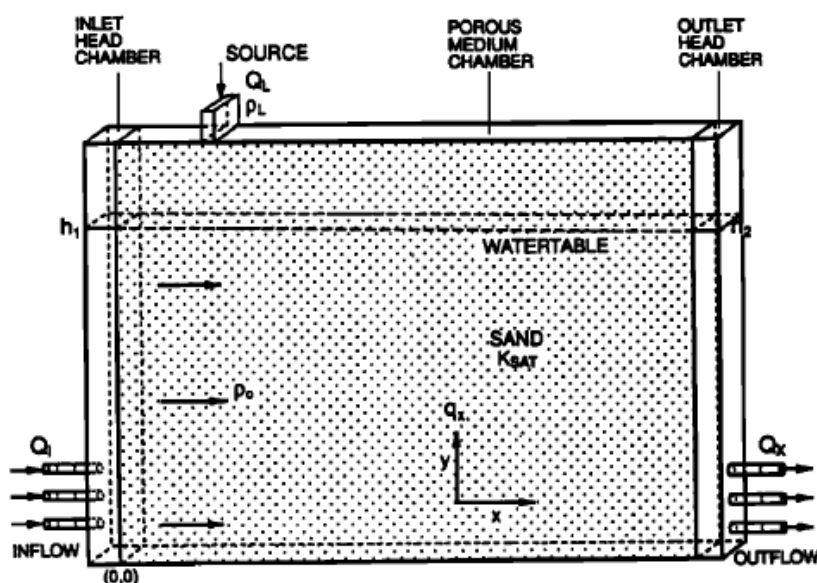


図 1.8 Oostrom らの用いた実験装置<sup>11)</sup>

彼らは、二種類の無次元数を用いて流体の密度差と地下水流の関係をもとめている。以下、彼らの用いた無次元数の定義式を示す。

$$\pi_1 = \frac{(K_{sat} \Delta\rho / \rho_0)}{q_x} \quad \text{式(1.22)}$$

$$Ra^* = \frac{(H_{dp} K_{sat} \Delta\rho / \rho_0)}{\varepsilon D_T} \quad \text{式(1.23)}$$

ここで、 $K_{sat}$ は透水係数、 $\Delta\rho$ は高密度流体と低密度流体の密度差、 $\rho_0$ は低密度流体の密度、 $q_x$ は水平方向の地下水流、 $\varepsilon$ は間隙率、 $D_T$ は拡散係数である。また、

$$H_{dp} = \left( \frac{Q_L}{Q_x} \right) h_s \quad \text{式(1.24)}$$

である。 $Q_L$ は高密度流体の流量、 $Q_x$ は実験系全体の流量、 $h_s$ は飽和領域の高さである。ここで、Oostrom らの研究で重要視されている無次元数 $\pi$ の物理的意味について以下に示す。

図 2.4 に示すように、密度 $\rho_0$ の水で満たされた透水係数  $K$  の多孔質媒体内に、物質の溶解によって密度 $\rho(\rho > \rho_0)$ となった水が存在しているとする。また、水平方向に流速  $v$  の地下水が存在するとする。

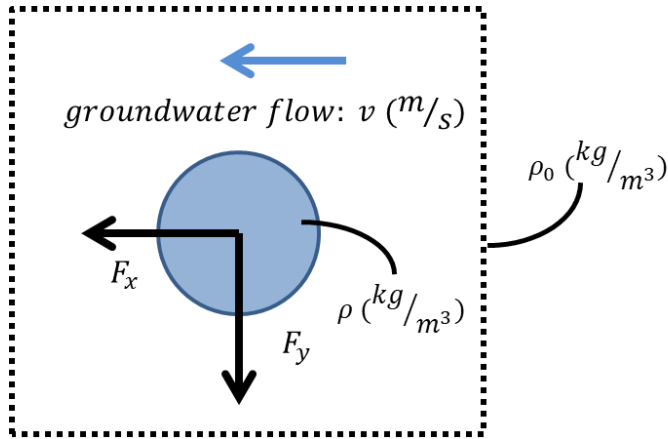


図 1.9 地下水中に存在する高密度流体の模式図

高密度流体に働く水平方向の単位体積当たりの力  $F_x$  について考える。このとき、高密度流体に対して働く圧力を  $P$  として

$$F_x = \frac{dP}{dx} \quad \text{式(1.25)}$$

である。また、浸透率を  $k$ 、流体の粘度を  $\mu$  とすると、

$$v = \frac{-k}{\mu} \times \frac{dP}{dx} \quad \text{式(1.26)}$$

であるから、

$$F_x = -\frac{\mu v}{k} \quad \text{式(1.27)}$$

である。また、重力加速度を  $g$  とすると、鉛直方向下向きに働く単位体積当たりの力  $F_y$  について、

$$F_y = (\rho - \rho_0)g \quad \text{式(1.28)}$$

である。 $F_y$  と  $F_x$  の比をとることで、

$$\pi = \frac{F_y}{F_x} = -\frac{(\rho - \rho_0)gk}{\mu v} \quad \text{式(1.29)}$$

を得る。また、

$$k = \frac{\mu K}{\rho g} \quad \text{式(1.30)}$$

であるから、これを式(1.30)に代入することで、

$$\pi = \frac{(\rho - \rho_0)K}{\rho v} \quad \text{式(1.31)}$$

である。

Oostrom らによって得られた実験結果をまとめたものを、図 1.10 に示す。縦軸 stability は、1 のときは不安定性を持った流れであることを示し、0 のときはそうでないことを示す。

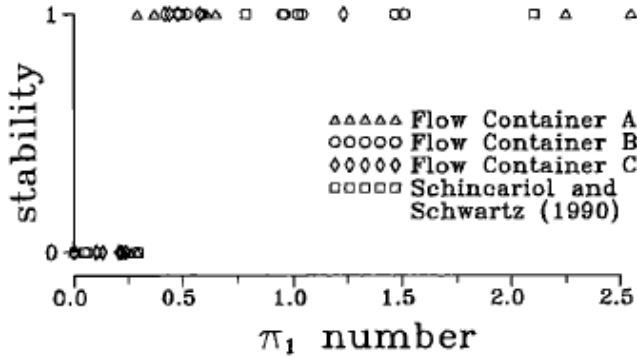


図 1.10 無次元数 $\pi_1$ と高密度流体の挙動の関係

図 1.10 に示された通り、Oostrom らの実験結果においては、透水係数のそれぞれ異なるいずれの実験系においても $\pi_1 = 0.3$ を境界にして流動の様子が変わっている<sup>11)</sup>ことがわかる。また、同様にして $Ra^*$ の値と流動の様子の関係を表したグラフを図 1.11 および 1.12 に示す。

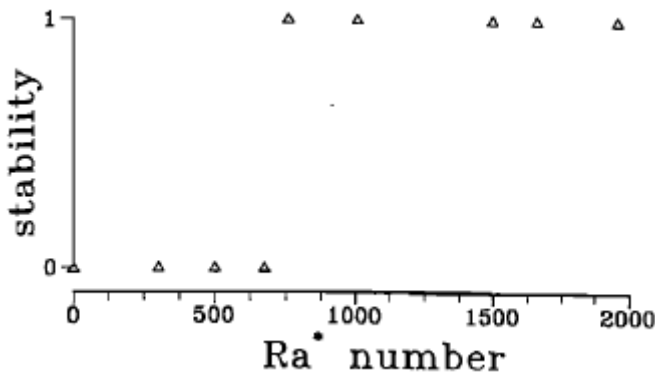


図 1.11 実験装置 A における $Ra^*$ と高密度流体の挙動の関係

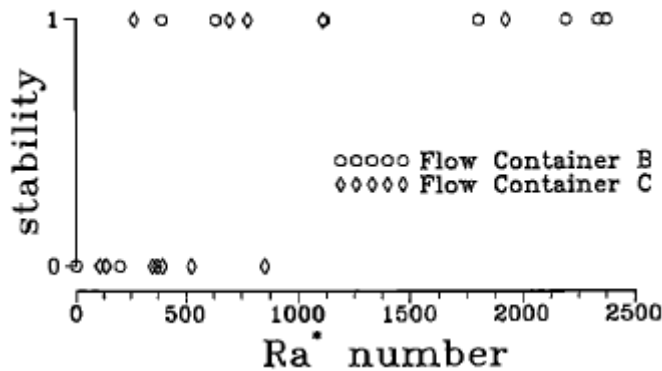


図 1.12 実験装置 B,C における  $Ra^*$  と高密度流体の挙動の関係

Oostrom らは、図 1.11 および 1.12 に示したように、 $Ra^*$  と高密度流体の挙動の不安定性の間に  $\pi_1$  ほどの明確な差は見られなかった<sup>11)</sup>と結論付けている。

ところで、Oostrom らは無次元数  $\pi_1$  を算出する際に、装置右端からの排水量  $Q_x$  を用いて水平方向の流速  $q_x$  を計算し、 $\pi_1$  を算出している。図 1.8 に示したように、装置に流入する流体の量について考えると、装置左端からの注水量  $Q_I$  と、装置上方からの注入量  $Q_L$  のみであるため、

$$Q_x = Q_I + Q_L \quad \text{式(2.8)}$$

が成立する。しかし、注入された高密度流体に対して与える影響は、本来  $Q_I$  と  $Q_L$  で異なるものであると考えられる。 $Q_I$  は装置左端から右端への流動であるため、完全に高密度流体の水平方向の流動に寄与すると考えられるが、 $Q_L$  は装置上端からの注入であるため、すべての注入量が水平方向の流動に寄与するわけではないと考えられる。そこで、

$$Q_x = Q_I \quad \text{式(2.8)}$$

として  $\pi_1$  の算出を行い、結果をまとめた。表 1.1 に、Oostrom らが用いた実験装置のパラメータを示す。表 1.2 に、再計算後の Oostrom らの実験結果を示す。表 1.2 に示された通り、 $Q_x$  の計算方法を変えることで、流動状態が変化するときの  $\pi_1$  の値が約 0.4 に変化した。

表 1.1 Oostrom らの実験条件

	装置 A	装置 C
水平方向長さ /cm	80	167
装置高さ /cm	40	100
装置厚み /cm	5	5.1
透水係数 / $10^{-4} \text{m s}^{-1}$	92.361	4.16667
粒径 /mm	1.2	0.5
間隙率	0.4	0.35

表 1.2 再計算後の Oostrom らの実験結果

実験番号	状態	$\pi$	$\Delta\rho/\rho_0$
A3	不安定	1.65	$1.0 \times 10^{-2}$
A4	不安定	2.03	$1.0 \times 10^{-2}$
A5	不安定	8.11	$3.6 \times 10^{-2}$
A12	不安定	6.04	$3.6 \times 10^{-2}$
A13	不安定	1.46	$1.0 \times 10^{-2}$
A26	不安定	0.643	$5.0 \times 10^{-3}$
A28	安定	0.419	$5.0 \times 10^{-3}$
A29	安定	0.372	$5.0 \times 10^{-3}$
C2	安定	0.243	$7.2 \times 10^{-3}$
C4b	安定	0.306	$7.2 \times 10^{-3}$
C6b	不安定	0.484	$1.4 \times 10^{-2}$
C8b	安定	0.254	$3.7 \times 10^{-3}$
C-I	安定	0.143	$7.2 \times 10^{-3}$
C-II	安定	0.108	$7.2 \times 10^{-3}$
C-III	安定	0.235	$7.2 \times 10^{-3}$
C-IV	不安定	0.879	$7.2 \times 10^{-3}$
C-V	不安定	1.98	$1.4 \times 10^{-2}$
C-VI	安定	0.254	$5.0 \times 10^{-3}$
C-VIII	安定	0.28	$1.0 \times 10^{-3}$
C-IX	不安定	0.56	$2.0 \times 10^{-3}$

## 1.4 研究目的

### 1.4.1 CMS に関する課題

前述のように CMS は、従来の CCS と比較して、極めて広い範囲で実施可能であることが最大の特徴である。これは、地下に貯留可能な CO<sub>2</sub> の量を大きく向上させる要素である。しかし、CMS の再現実験を行った研究は未だ報告されていないため、まずは注入した CO<sub>2</sub> 溶解水が沈降するかどうか確認する必要がある。また、実際に CMS を実施する際には、シミュレーション計算を行ったうえで計画的に注入を行い、周辺のモニタリングを継続して行わなければならない。特にシミュレーション計算に関しては、注入した CO<sub>2</sub> が地下水とともに流動するという CMS の特徴を考慮に入れると、地下水の移流や密度差が CO<sub>2</sub> の挙動に与える影響を正確に予測できるものでなければならない。しかし、1.3.2 で述べたように、注入後の CO<sub>2</sub> 挙動のシミュレーションは、メッシュの大きさや、地下環境として与えられ

るパラメータのばらつきなどによって、結果が変わってしまうという特徴がある。それゆえ、得られたシミュレーション結果の妥当性について評価することが難しいと考えられる。また、1.3.2 で述べた重力不安定を含めて正確なシミュレーションを行うためには、メッシュ数を増加させることが必要となるが、メッシュ数の増加は計算量の増加をもたらす。特に、CMS の実施スケールでシミュレーションを行う場合は、非常に広範囲でシミュレーションを行うことが求められるため、すべての範囲について微細なメッシュ設定を行うとなると、計算量の増加量も莫大なものとなることが予想される。

#### 1.4.2 研究目的

1.4.1 で述べたような課題を解決するためには、実験系において地下における CO<sub>2</sub> 溶解水の挙動の観察を行うことが必要となる。実験系のデータとシミュレーション結果の比較を行うことで、シミュレーション結果の妥当性を評価することが可能となる。また、重力不安定性を考慮すべき場合と、そうでない場合を無次元数などによって区別することが出来るようになれば、重力不安定性を考慮すべき領域でのみメッシュ幅を小さくするなどして、計算量を抑制することが出来るようになる。そこで、以下の二点を本研究の目的とする。

- ・ CO<sub>2</sub> 溶解水の注入実験を行い、CMS の実現可能性を検討する
- ・ 重力不安定を考慮すべき場合とそうでない場合を無次元数によって区別する

## 2. 実験方法

### 2.1 水槽を用いた CO<sub>2</sub> 溶解水の挙動の観察

#### 2.1.1 実験装置

地下における二酸化炭素溶解水の挙動を観察するための実験装置の外観を図 2.1 に示す。

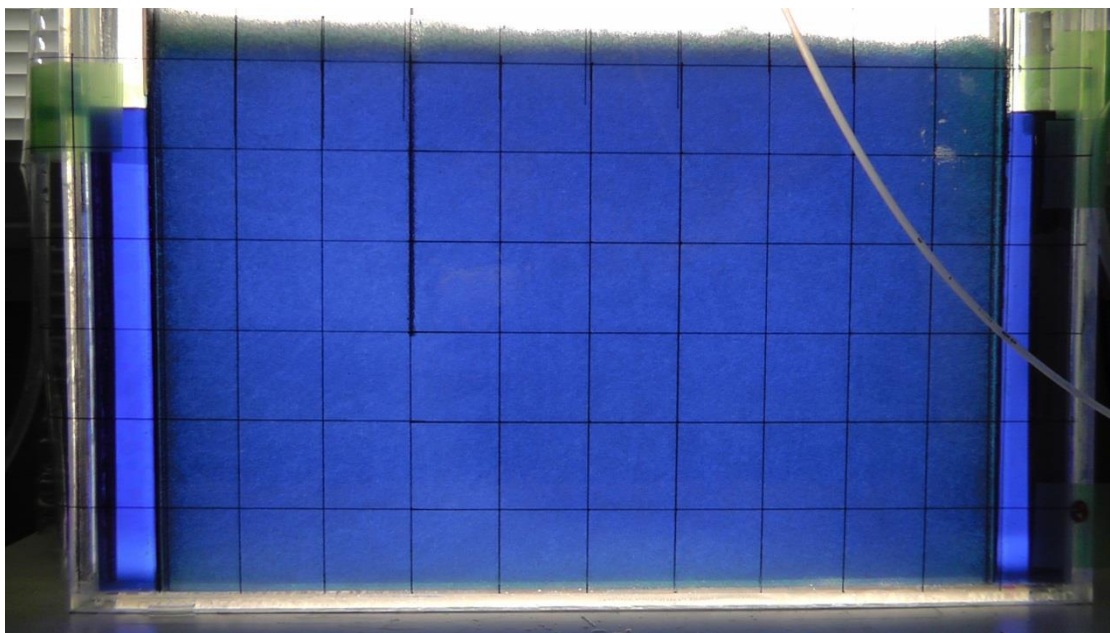


図 2.1 実験装置外観

実験装置はアクリル製の水槽(縦 35 cm, 横 50 cm, 奥行平均 4 cm)の中に直径 1 mm のガラスビーズを詰め、BTB 溶液で満たしたものを使用した。BTB 溶液は、関東化学プロチモールブルー溶液と純水を 1:100(体積比)で混合したものを使用した。左右は金網で仕切られており、装置の右端と左端には排水用の穴が存在する。右端の穴は、装置底部から 31 cm の位置に存在し、左端の穴は装置底部から 28 cm の位置に存在する。排水用の穴は左端のほうが低い位置に存在するため、右端から BTB 溶液を送り込むことで、ガラスビーズ内の図中右端から左端へと BTB 溶液の水流を作ることが出来るようになっている。装置右端から BTB 溶液を注入する際は、ペリスタポンプを用いて一定の流量で送り込むようにした。

CO<sub>2</sub> 溶解水は、ペリスタポンプを用いて一定の割合で送り出され、ステンレス製の管を通して水槽内に注入される。ステンレス製の管は、実験ごとに任意の位置に移動できるようになっている。図 2.1 においては、ガラスビーズ充填部分の左端から 15 cm, 下端から 15 cm の位置に CO<sub>2</sub> 溶解水の注入部分が存在する。CO<sub>2</sub> 溶解水の作成には(有)OK エンジニアリング作成の OKE-MB200mL-PT1/8.MO を用いて行った。

図 2.2 に、OKE-MB200mL-PT1/8.MO を示す。図のマイクロバブル発生器には二種類の樹脂製の管が接続されている。図中下側は CO<sub>2</sub> バルーンに接続されており、図中上側は背圧

タンクに接続されている。背圧タンク内には純水が入れてあり、弁を開放することで、純水が一定の圧力でマイクロバブル発生装置に送り込まれる。それと同時に  $\text{CO}_2$  がマイクロバブル発生装置に吸い込まれ、マイクロバブルとなる仕組みである。

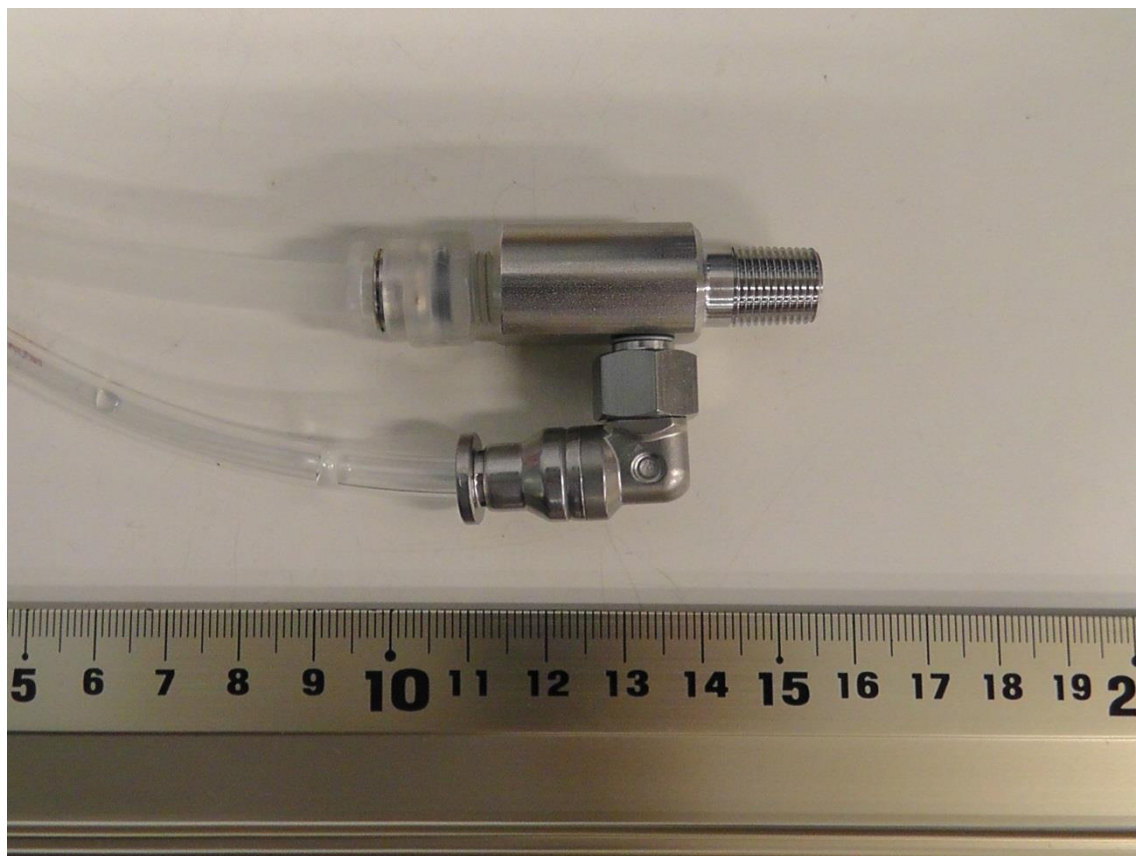


図 2.2 実験に用いたマイクロバブル発生装置 OKE-MB200mL-PT1/8.MO

実験水槽内に  $\text{CO}_2$  溶解水を注入した場合、 $\text{CO}_2$  が存在する部分の BTB 溶液は pH が減少して黄色く変色するため、 $\text{CO}_2$  溶解水の注入後は BTB 溶液の色の変化を通して、水槽内における  $\text{CO}_2$  の挙動が直接観察できるようになっている。また、水槽自体には 5 cm 間隔で黒色の線が引かれており、注入後の移動距離が分かるようになっている。BTB 溶液は CMS における地下水を模しており、この実験を通して地下水中に  $\text{CO}_2$  溶解水を注入したときの挙動を模擬的に再現できる。

### 2.1.2 透水係数測定実験

以下の実験において、実験開始前にガラスビーズの詰めなおしを行った場合は、透水係数の測定実験を行った。実験手順は以下の通りである。

まず、ポンプを用いて、水槽内右側に BTB 溶液の供給を行った。水槽の左端と右端には、高さの違う 2 つの排水用の穴が存在するため、十分な量の BTB 溶液の供給を行うことで、



一定の水頭差を作ることができる。その後、BTB 溶液の供給を行いながら、実験装置左側からの排水速度を調べ、以下の理論により実験装置内の透水係数を算出した。

図 2.3 に示すような多孔質媒体を考える。図 2.3 右端の全水頭を  $h_1$ 、左端の全水頭を  $h_2$  とする。この媒体の奥行きを  $b$  とし、右端から左端までの長さを  $L$  とする。また、この媒体の透水係数を  $K$  とする。いま、右端から  $x$  の位置における流体の単位時間当たりの流量  $q$  を考えると、

$$q = -Kbh \frac{\partial h}{\partial x} \quad \text{式(2.1)}$$

$$q = \frac{Kb}{2} \frac{\partial (h^2)}{\partial x} \quad \text{式(2.2)}$$

$$qx = -\frac{2qL}{b} h^2 + C \quad \text{式(2.3)}$$

ただし、 $C$  は積分定数である。 $x = 0$  のとき  $h = h_1$  であるから、

$$C = h_1^2 \frac{Kb}{2} \quad \text{式(2.4)}$$

これを式(2.3)に代入して、

$$qx = -\frac{Kb}{2} (h^2 - h_1^2) \quad \text{式(2.5)}$$

であり、 $x = L$  において  $h = h_2$  であるから、

$$qL = -\frac{Kb}{2} (h_2^2 - h_1^2) \quad \text{式(2.6)}$$

$$K = \frac{2qL}{b} (h_1^2 - h_2^2)^{-1} \quad \text{式(2.7)}$$

実験装置において、ポンプを用いて左端と右端の全水頭を一定に保ちながら流量を測定し、式(2.7)に  $K$  以外の値を代入することで実験装置内の透水係数の測定を行った。

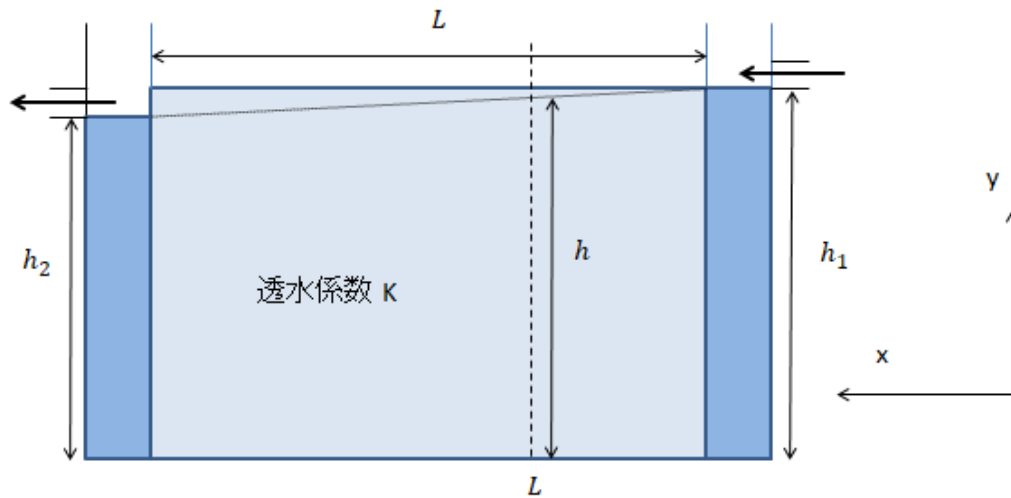


図 2.3 実験装置の概念図

### 2.1.3 水流下での $\text{CO}_2$ 溶解水の注入後の挙動の観察

地下水流が注入後の  $\text{CO}_2$  の挙動に与える影響を調べるために、 $\text{CO}_2$  溶解水の注入実験を行った。具体的な手順は以下のとおりである。

まず、マイクロバブル発生装置を用いて  $\text{CO}_2$  溶解水を作成し、炭酸ガス電極を用いて  $\text{CO}_2$  濃度の測定を行った。その後、作成した  $\text{CO}_2$  溶解水に BTB 溶液を添加し、BTB 溶液の体積割合がガラスビーズ水槽内と同じになるようにした。次に、ペリスタポンプを用いて、ガラスビーズ水槽内に、 $\text{CO}_2$  溶解水の注入を行った。BTB 溶液の水流を作る場合は、 $\text{CO}_2$  溶解水の注入開始と同時に別のペリスタポンプを用いて実験装置右端への BTB 溶液の注入を開始した。 $\text{CO}_2$  溶解水の注入開始と同時に、カメラを用いて水槽内の色の変化の記録を行った。注入開始から 60 分後に、 $\text{CO}_2$  溶解水の注入を停止し、更に 60 分後にカメラによる記録を停止した。実験の繰り返しによって装置内部の密度や透水係数の分布に偏りが出来ることを防ぐため、毎回の実験開始前にはガラスビーズの洗浄と詰めなおしを行った。図 2.4 に、実験手順を示す。

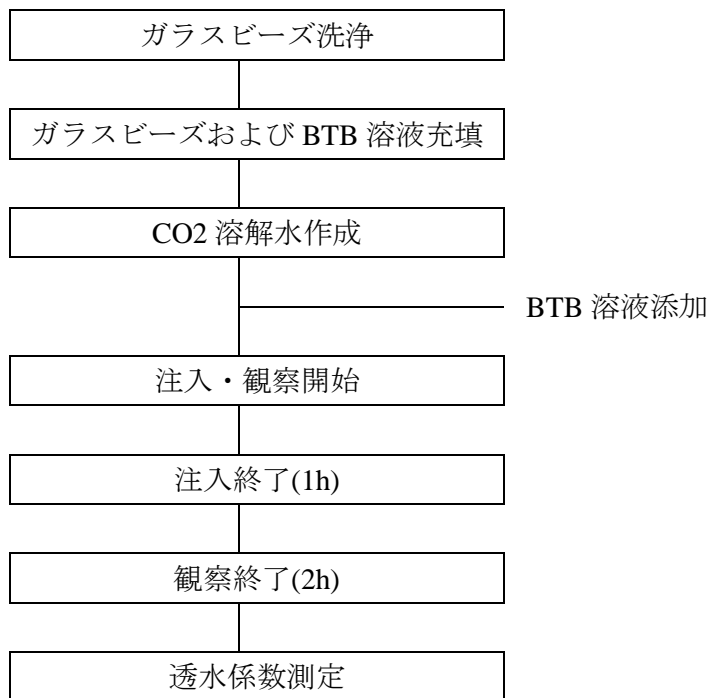


図 2.4 実験手順

結果の解析においては、Oostrom らと同様に無次元数 $\pi_1$ を用いて行った。

## 2.2 Dtransu を用いたシミュレーションと実験結果の比較

### 2.2.1 Dtransu の概要<sup>12)</sup>

Dtransu は、岡山大学 西垣誠教授、三菱マテリアル(株)、(株)ダイヤコンサルタントの三社共同で開発されたプログラムである。以下に、Dtransu で用いられている移流分散理論について示す。

地下水に溶解した物質が、地盤中を地下水とともに移動・拡大する現象では、地下水の移動によって物質が運ばれる「移流」、ブラウン運動によって物質が広がる「拡散」、地盤中の流速の不均質性によって地盤中に物質が広がる「分散」があるとされている。地下水中の物質移動のシミュレーションではこれらの一連の物質移動現象を再現するために、一般的に移流分散方程式が用いられる。

移流による地盤中の物質移動を考えるために、単位時間中に微小立方体中を移動する物質の収支を考える。まず、地下水の移動(移流)に伴う濃度変化を考える。移流による物質移動は、地下水の体積移動によるものであり、その平均移動速度 $V_i$ (実流速)は、ダルシー流速を $u_i$ とし、有効間隙率を $n_e$ とすると、

$$V_i = \frac{u_i}{n_e} \quad (i = 1, 2, 3) \quad \text{式(2.8)}$$

と表される。この実流速による物質移動を、図 2.5 に示す微小立方体で考える。ただし、

$\theta$  : 体積含水率、 $\rho$  : 流体密度、 $v$  : 流速 である。

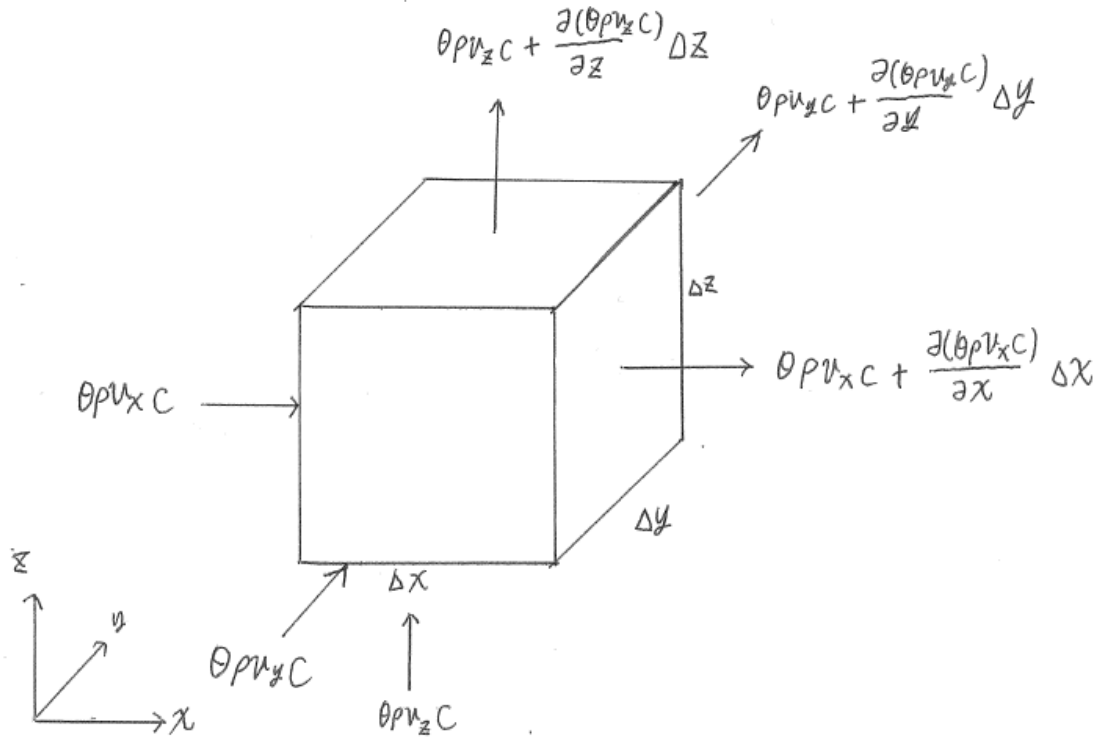


図 2.5 微小立方体における移流の収支

微小時間 $\Delta t$ における立方体内の濃度変化を $\Delta C_{adv}$ とすると、以下の等式が成立する。

$$-(\rho\theta\Delta C_{adv})\Delta x\Delta y\Delta z = \Delta t \left[ \frac{\partial(\rho\theta v_x c)}{\partial x} + \frac{\partial(\rho\theta v_y c)}{\partial y} + \frac{\partial(\rho\theta v_z c)}{\partial z} \right] \Delta x\Delta y\Delta z \quad \text{式(2.9)}$$

式(2.9)の両辺を $\Delta t\Delta x\Delta y\Delta z$  で割り、 $\Delta t, \Delta x, \Delta y, \Delta z \rightarrow 0$ とすることで次式を得る。

$$-\frac{\partial\rho\theta C_{adv}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}(\rho\theta v_x c) + \frac{\partial}{\partial y}(\rho\theta v_y c) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho\theta v_z c) \quad \text{式(2.10)}$$

次に、分散による濃度変化について考える。Fick の法則によれば、拡散係数を $D_{diff}$ とすると、三次元において濃度フラックス $J_{diff}$ は以下の式で与えられる。

$$J_{diff} = -D_{diff} \left( \frac{dc}{dx} + \frac{dc}{dy} + \frac{dc}{dz} \right) \quad \text{式(2.11)}$$

多孔質媒体内を物質が移動する際に、地下水流速の不均質性により濃度が空間的に広がる。この機械的な濃度の広がり、拡散と同様に考えられるとされている。分散係数を $D$ とすると、微小立方体における物質収支の様子は、図 2.6 に示すようになる。

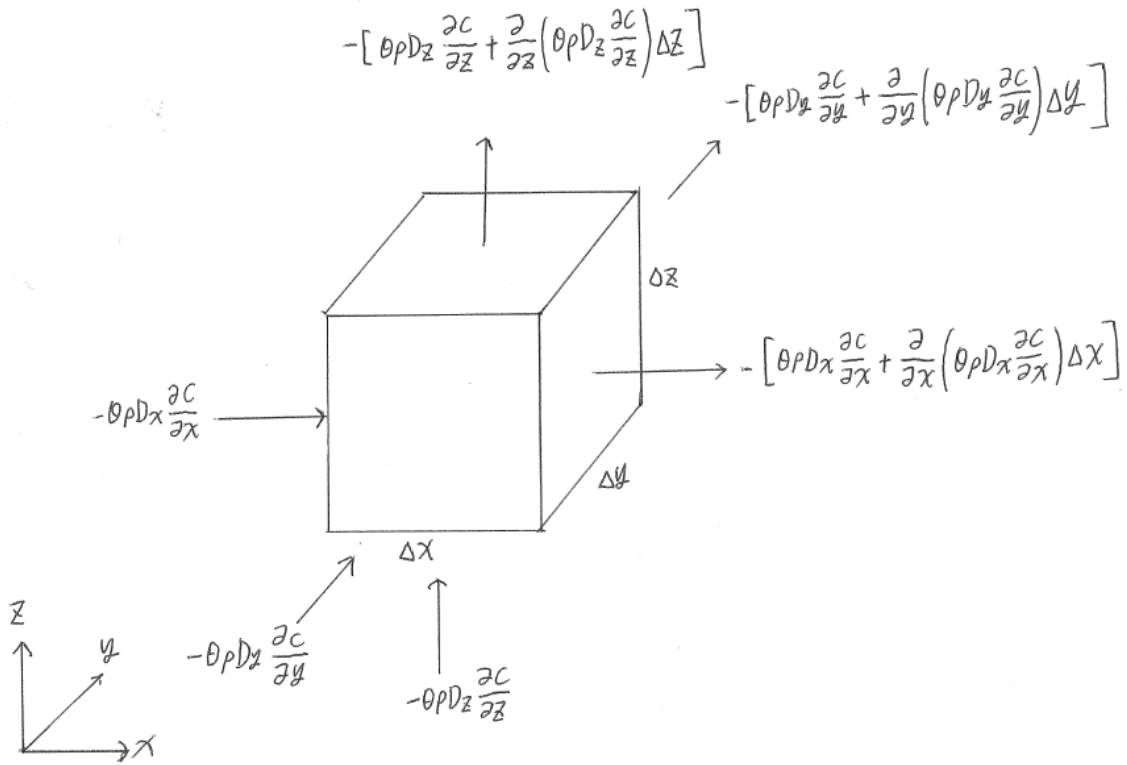


図 2.6 分散による微小立方体の物質収支

図 2.6 から、時間  $\Delta t$  内における微小立方体内の濃度変化を  $D_{dis}$  とし、物質収支を考えると、以下の式が成立する。

$$\begin{aligned}
 & -(\rho\theta\Delta C_{dis})\Delta x\Delta y\Delta z = \\
 & -\Delta t \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( \theta\rho D_x \frac{\partial c}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \theta\rho D_y \frac{\partial c}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \theta\rho D_z \frac{\partial c}{\partial z} \right) \right] \Delta x\Delta y\Delta z
 \end{aligned} \tag{2.12}$$

式(2.12)の両辺を  $\Delta t\Delta x\Delta y\Delta z$  で割り、 $\Delta t, \Delta x, \Delta y, \Delta z \rightarrow 0$  とすることで次式を得る。

$$-\frac{\partial \rho\theta\Delta C_{dis}}{\partial t} = - \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( \theta\rho D_x \frac{\partial c}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \theta\rho D_y \frac{\partial c}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \theta\rho D_z \frac{\partial c}{\partial z} \right) \right] \tag{2.12}$$

式(2.10)と式(2.12)の濃度変化の式を合成する。

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t}(\rho\theta c) &= \frac{\partial}{\partial x} \left( \rho\theta D_{xx} \frac{\partial c}{\partial x} + \rho\theta D_{xy} \frac{\partial c}{\partial y} + \rho\theta D_{xz} \frac{\partial c}{\partial z} \right) \\
 &+ \frac{\partial}{\partial y} \left( \rho\theta D_{yx} \frac{\partial c}{\partial x} + \rho\theta D_{yy} \frac{\partial c}{\partial y} + \rho\theta D_{yz} \frac{\partial c}{\partial z} \right) \\
 &+ \frac{\partial}{\partial z} \left( \rho\theta D_{zx} \frac{\partial c}{\partial x} + \rho\theta D_{zy} \frac{\partial c}{\partial y} + \rho\theta D_{zz} \frac{\partial c}{\partial z} \right) \\
 &- \left[ \frac{\partial}{\partial x}(\rho\theta V_x c) + \frac{\partial}{\partial y}(\rho\theta V_y c) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho\theta V_z c) \right] + Q_c
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

ここで、 $D_{ij}$  : 分散テンソル、 $c$  : 濃度、 $Q_c$  : 源泉項 である。これに、

$$\frac{\partial}{\partial t}(\theta\rho c) = c \frac{\partial}{\partial t}(\theta\rho) + \theta\rho \frac{\partial c}{\partial t} \quad \text{式(2.14)}$$

$$-\frac{\partial}{\partial x_i}(\theta\rho V_i c) = -\left[ c \frac{\partial}{\partial x_i}(\theta\rho V_i) + \theta\rho V_i \frac{\partial c}{\partial x_i} \right] \quad \text{式(2.15)}$$

の2式を代入することで、次式を得る。

$$c \frac{\partial}{\partial t}(\theta\rho) + \theta\rho \frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \theta\rho D_{ij} \frac{\partial c}{\partial x_j} \right) - \left[ c \frac{\partial}{\partial x_i}(\theta\rho V_i) + \theta\rho V_i \frac{\partial c}{\partial x_i} \right] + Q_c \quad \text{式(2.16)}$$

また、浸透の連続の式より、

$$\frac{\partial}{\partial t}(\theta\rho) = -\frac{\partial}{\partial x_i}(\theta\rho V_i) \quad \text{式(2.17)}$$

であり、これを式(2.16)に用いて整理すると以下のようになる。

$$\begin{aligned} \theta\rho \frac{\partial c}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left( \rho\theta D_{xx} \frac{\partial c}{\partial x} + \rho\theta D_{xy} \frac{\partial c}{\partial y} + \rho\theta D_{xz} \frac{\partial c}{\partial z} \right) \\ &+ \frac{\partial}{\partial y} \left( \rho\theta D_{yx} \frac{\partial c}{\partial x} + \rho\theta D_{yy} \frac{\partial c}{\partial y} + \rho\theta D_{yz} \frac{\partial c}{\partial z} \right) \\ &+ \frac{\partial}{\partial z} \left( \rho\theta D_{zx} \frac{\partial c}{\partial x} + \rho\theta D_{zy} \frac{\partial c}{\partial y} + \rho\theta D_{zz} \frac{\partial c}{\partial z} \right) - \theta\rho V_x \frac{\partial c}{\partial x} \\ &- \theta\rho V_y \frac{\partial c}{\partial y} - \theta\rho V_z \frac{\partial c}{\partial z} + Q_c \end{aligned} \quad \text{式(2.18)}$$

地盤中での物質輸送では、土壌分子への吸脱着や、化学物質の分解などが起こる。吸着量は濃度依存性を持つが、吸着量が濃度によらないと仮定すると、吸脱着による物質移動の遅れを表す遅延係数  $R$  は、飽和度に対する分配係数  $K_d$  および土の乾燥密度  $\rho_d$  を用いて以下のように定義される。

$$R = \left( 1 + \frac{\rho_d}{\theta} K_d \right) \quad \text{式(2.19)}$$

また、化学的分解などによる濃度の減少を放射性物質の自然崩壊と等価であるととらえ、減衰係数  $\lambda$  を加えて式(2.19)を整理すると以下のようになる。

$$R\theta\rho \frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \theta\rho D_{ij} \frac{\partial c}{\partial x_j} \right) - \theta\rho V_i \frac{\partial c}{\partial x_i} - R\theta\rho\lambda c + Q_c \quad \text{式(2.20)}$$

式(2.20)が移流分散の基礎方程式である。分散テンソルは、Bear(1972)が示した次式が用いられている。

$$D_{ij} = \alpha_T \|V\| \delta_{ij} + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_i V_j}{\|V\|} + \alpha_m \tau \delta_{ij} \quad (i = 1, 2, 3) \quad \text{式(2.21)}$$

ただし、 $\alpha_T$  : 横分散長、 $\alpha_L$  : 縦分散長、 $V_i$  : 実流速ベクトル、 $\|V\|$  : 実流速の絶対値、 $\alpha_m$  : 分子拡散係数、 $\tau$  : 屈曲率、 $\delta_{ij}$  : クロネッカーのデルタ である。

## 2.2.2 実験及びシミュレーション条件

実験結果とシミュレーション結果の比較を行うために、実験装置における状態を Dtransu において再現し、結果の比較を行った。実験条件を表 2.1 に示す。

表 2.1 シミュレーションとの比較に用いた実験における条件

項目	数値
透水係数 / $\text{m s}^{-1}$	0.0173
注入速度 / $\text{mL s}^{-1}$	0.081667
注入時間 /s	1800
CO2 濃度 / $\text{mg L}^{-1}$	176

表 2.1 に示す通り、注入は 1800 秒間行われた。注入終了後から 1800 秒間も観察が継続された。また、Dtransu での計算に用いた設定条件を図 2.7、図 2.8、表 2.2 に示す。

コントロールデータ ×

ELUS(1) | ELUS(2) | TIMESTEP

モード	<input type="radio"/> データチェック <input checked="" type="radio"/> 本実行 <input type="radio"/> リスタート(-) <input type="radio"/> リスタート(*)           ステップ <input type="text"/>
定常・非定常	<input type="radio"/> 定常解析 <input checked="" type="radio"/> 非定常解析 <input type="radio"/> 浸透流のみ定常解析
飽和・不飽和	<input type="radio"/> 飽和解析 <input checked="" type="radio"/> 飽和・不飽和解析
モデル	<input type="radio"/> 平面2次元 <input type="radio"/> 軸対称モデル <input checked="" type="radio"/> 鉛直2次元モデル
初期水頭分布	<input type="radio"/> 圧力水頭で入力 <input checked="" type="radio"/> 全水頭で入力
最大反復計算	<input type="text" value="10"/>
時間積分方法	<input checked="" type="radio"/> 後退差分 <input type="radio"/> 中央差分
時間分割繰返し数	<input type="text" value="3"/>
最小時間増分	<input type="text" value="0.001"/>
ガウス積分次数	<input checked="" type="radio"/> 2 <input type="radio"/> 3 <input type="radio"/> 4
エコプリント	<input checked="" type="radio"/> 印刷しない <input type="radio"/> 印刷する
ジェネレートデータ	<input type="radio"/> 印刷しない <input checked="" type="radio"/> 印刷する <input type="radio"/> 節点、要素データを除いて印刷する
解析結果	<input type="radio"/> 印刷しない <input checked="" type="radio"/> 印刷する <input type="radio"/> 収束状況の詳細情報と結果を印刷する
体積含水率	<input type="radio"/> 印刷しない <input checked="" type="radio"/> 印刷する
流速ベクトル	<input type="radio"/> 印刷しない <input checked="" type="radio"/> 印刷する

図 2.7 コントロールデータ(1)の設定

コントロールデータ

ELUS(1) ELUS(2) Timestep

圧力水頭収束判断許容値

モデル長さの単位

時間の単位

解析  浸透流解析のみ  浸透流 + 移流・分散  密度勾配を考慮した浸透流 + 移流・分散

水の密度

溶質の密度比-1.0

濃度収束判断許容値

節点の流速  有限要素メッシュから計算  要素流速の面積重み平均

図 2.8 コントロールデータ(2)の設定

表 2.2 物性データの設定

設定項目	数値
メッシュ間隔 /cm	0.5
計算時間 /s	300~1800
透水係数 $\text{m s}^{-1}$	0.0173
計算時間 / 時間分割数	10
有効間隙率	0.475~0.525
縦分散長 /m	$1.00 \times 10^{-4}$
横分散長 /m	$1.00 \times 10^{-5}$
分子拡散係数×屈曲率 $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	$1.70 \times 10^{-9}$
遅延係数	1
減衰係数	0

実験結果との比較を行うために 300~1800 秒の間で 300 秒ごとにシミュレーションを行った。また、各メッシュの有効間隙率は、装置内に存在する若干の不均質性を再現する為に 0.475~0.525 の範囲で与えられた。最大が 0.525、最小が 0.475 となるように、15 個の物性データに対して等間隔に有効間隙率の値を与え、乱数を用いてすべてのメッシュに無作為に 15 種類の物性データを振り分けた。また、作成したモデルは縦幅が 30 cm、横幅が 50 cm であり、左端と右端の節点全てに 30 cm の全水頭を与えた。また、左端と右端を除く下端の節点には、常に流量が 0 となるような設定条件を与えた。シミュレーションに用いたモデルの様子を図 2.9 に示す。図中の四角形で色が異なっているものは設定されている物性データが異なることを表しており、色付きの円は流量設定が行われた節点を表している。また、青色の逆三角形は水頭が固定されている節点を表している。



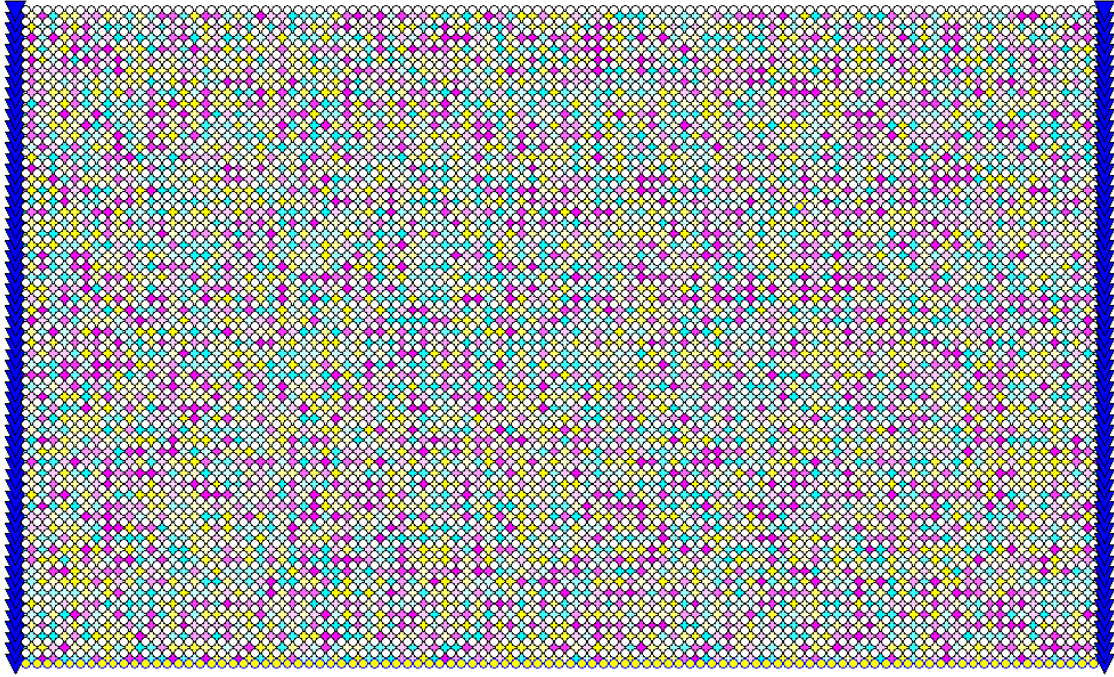


図 2.9 シミュレーションに用いたモデル

### 3. 実験結果

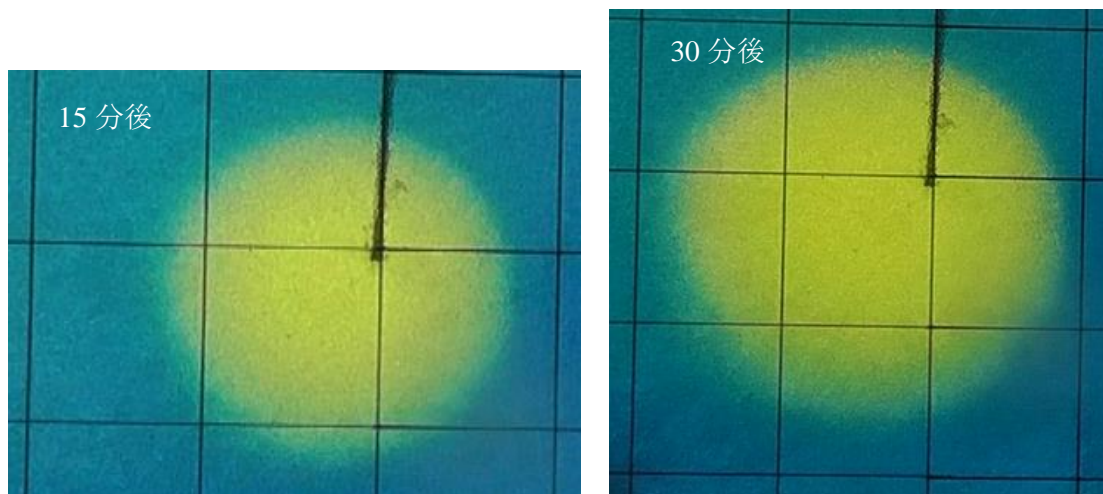
#### 3.1 水槽を用いた、CO<sub>2</sub> 溶解水の注入後の挙動の観察

表 3.1 に、実験条件を示す。

表 3.1 水槽を用いた CO<sub>2</sub> 挙動観察実験の実験条件

実験番号	透水係数 / $10^{-3}\text{m s}^{-1}$	CO <sub>2</sub> 溶解量 / $10^{-4}\text{kg L}^{-1}$	水平方向流速 / $10^{-6}\text{m s}^{-1}$	$\pi_1$	注入速度 / $\text{ml s}^{-1}$
1	6.83	4.56	6.22	0.500	0.0708
2	8.81	6.44	1.57	3.63	0.0708
3	10.5	6.33	4.51	1.48	0.0708
4	11.4	6.33	3.05	2.37	0.0708
5	11.0	6.67	5.32	1.38	0.0708
6	9.30	5.67	5.25	1.00	0.0708
7	7.88	6.11	5.80	0.830	0.0708
8	7.88	5.56	3.76	1.16	0.0708

図 3.1~3.8 に、各実験における 15 分ごとの装置内の色の変化の様子を示す。



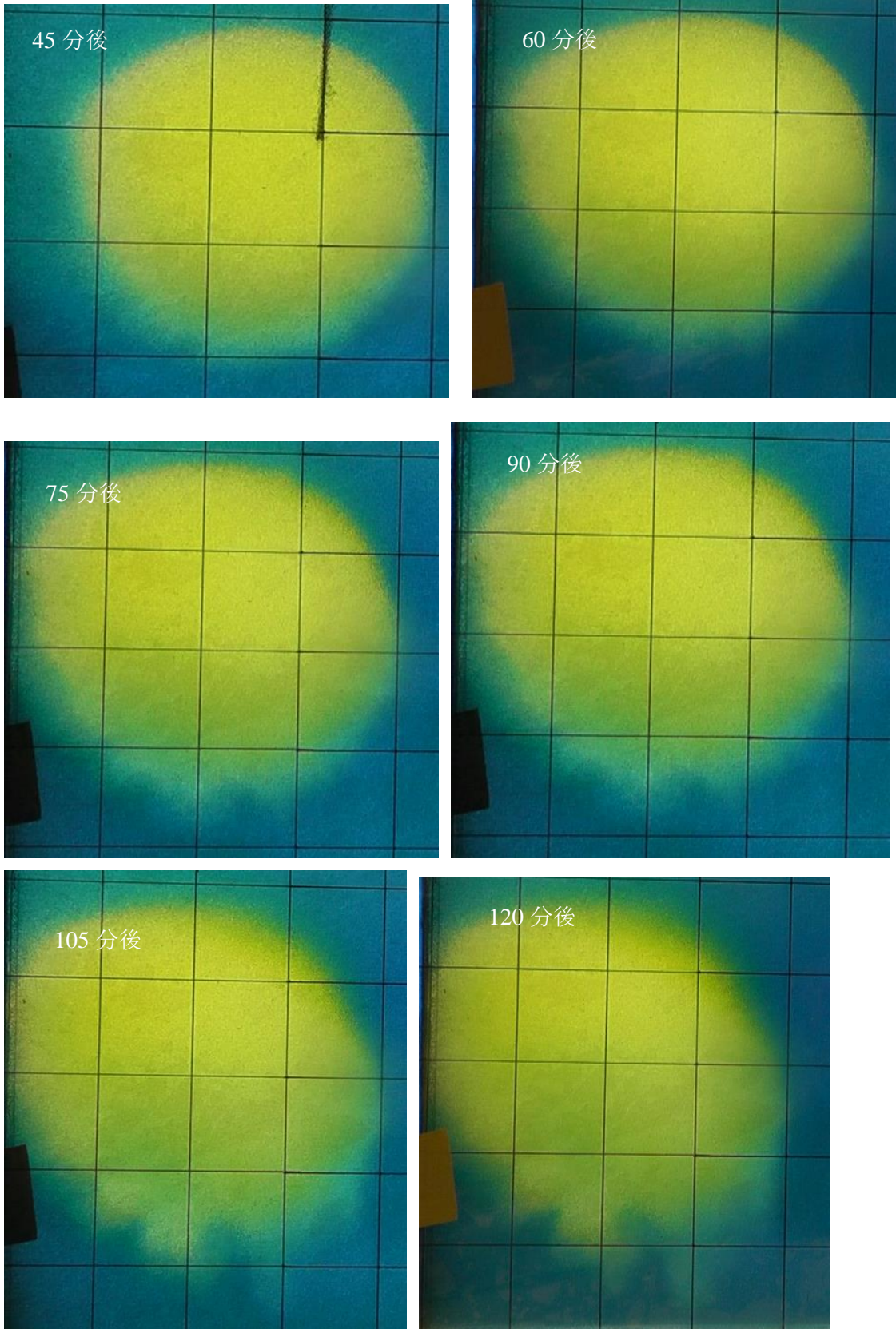
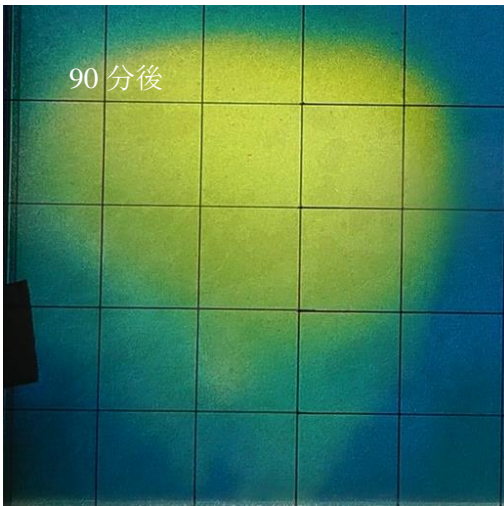
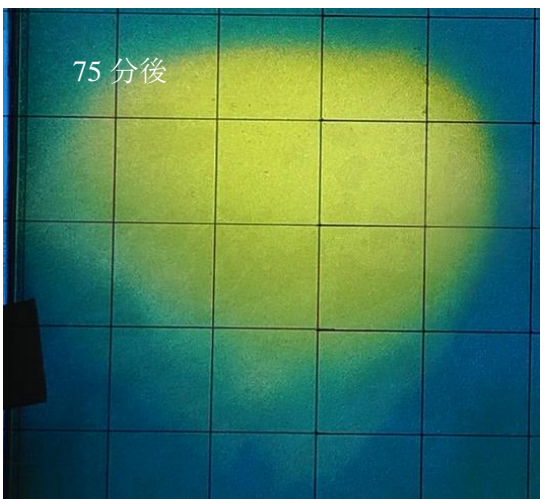
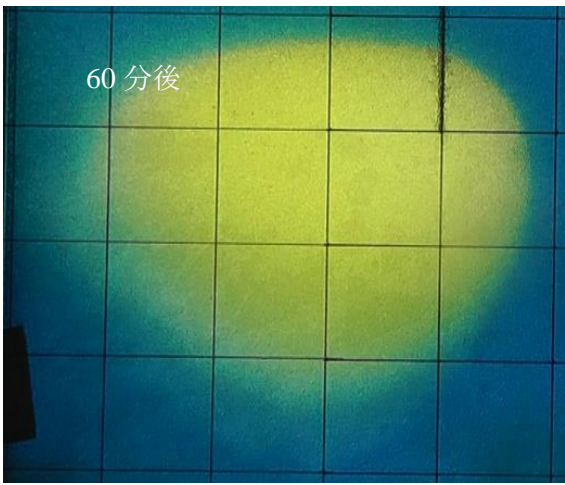
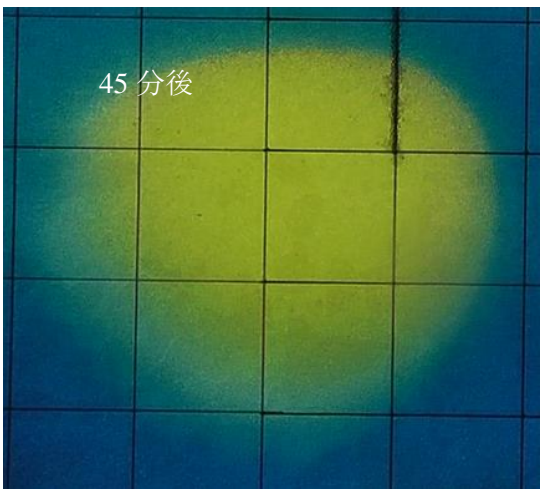
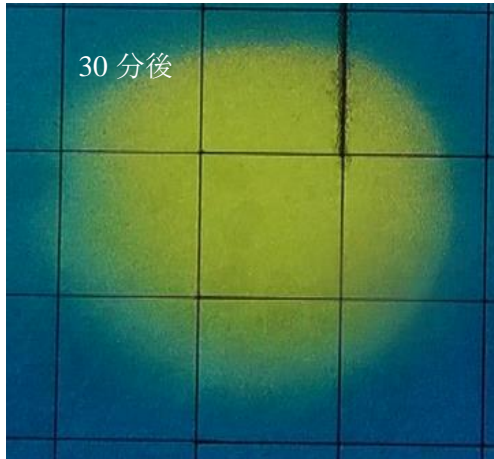
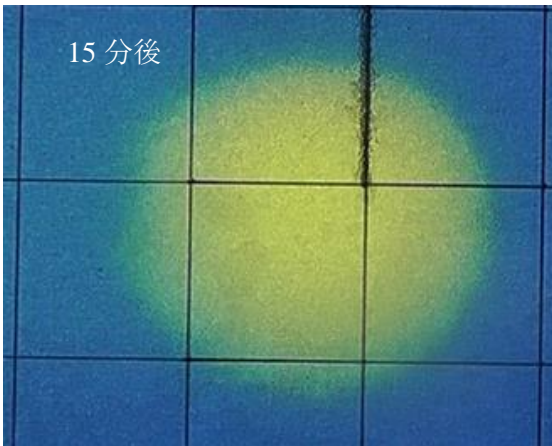


図 3.1  $\pi_1 = 3.63$ のときの 15 分間隔の色の变化の様子



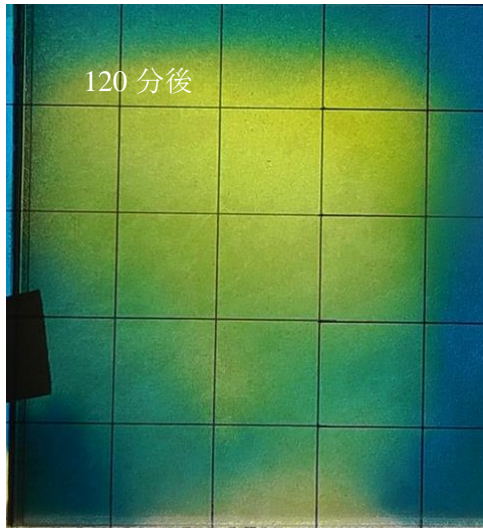
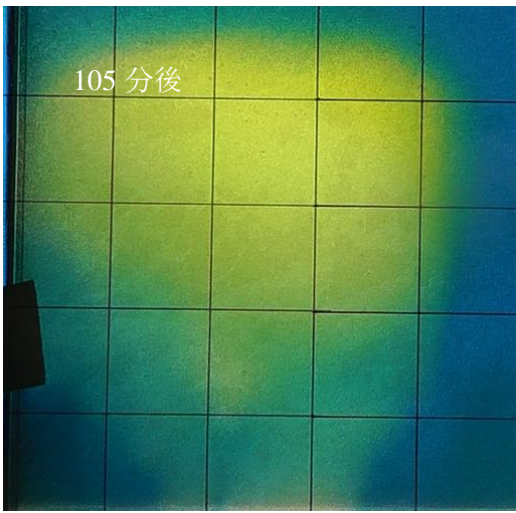
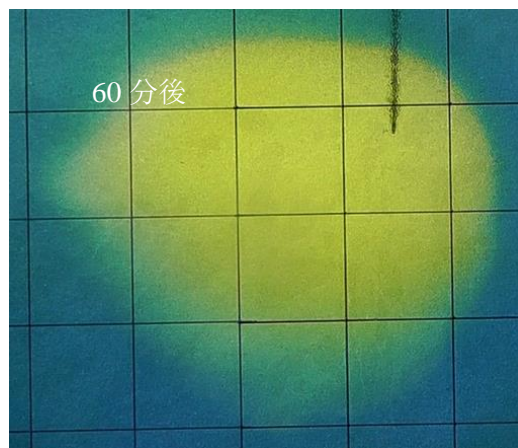
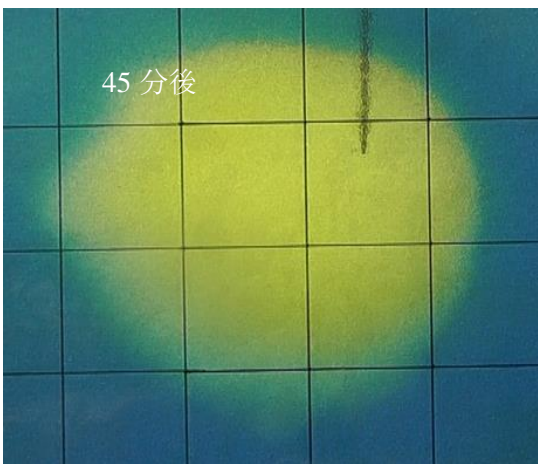
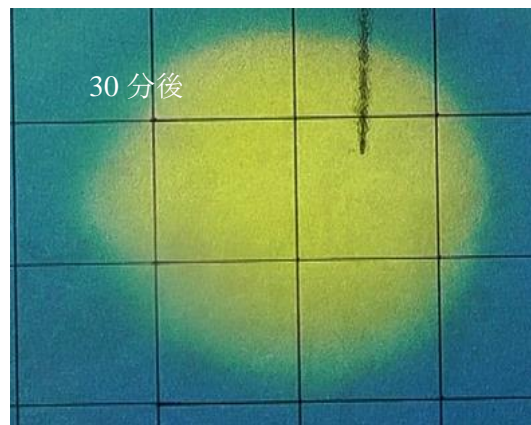
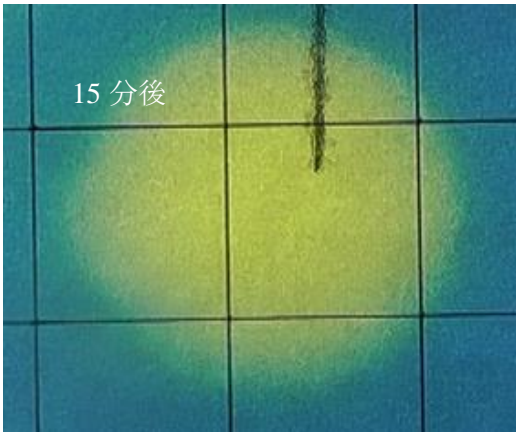


図 3.2  $\pi_1 = 2.37$ のときの 15 分間隔の色の变化の様子



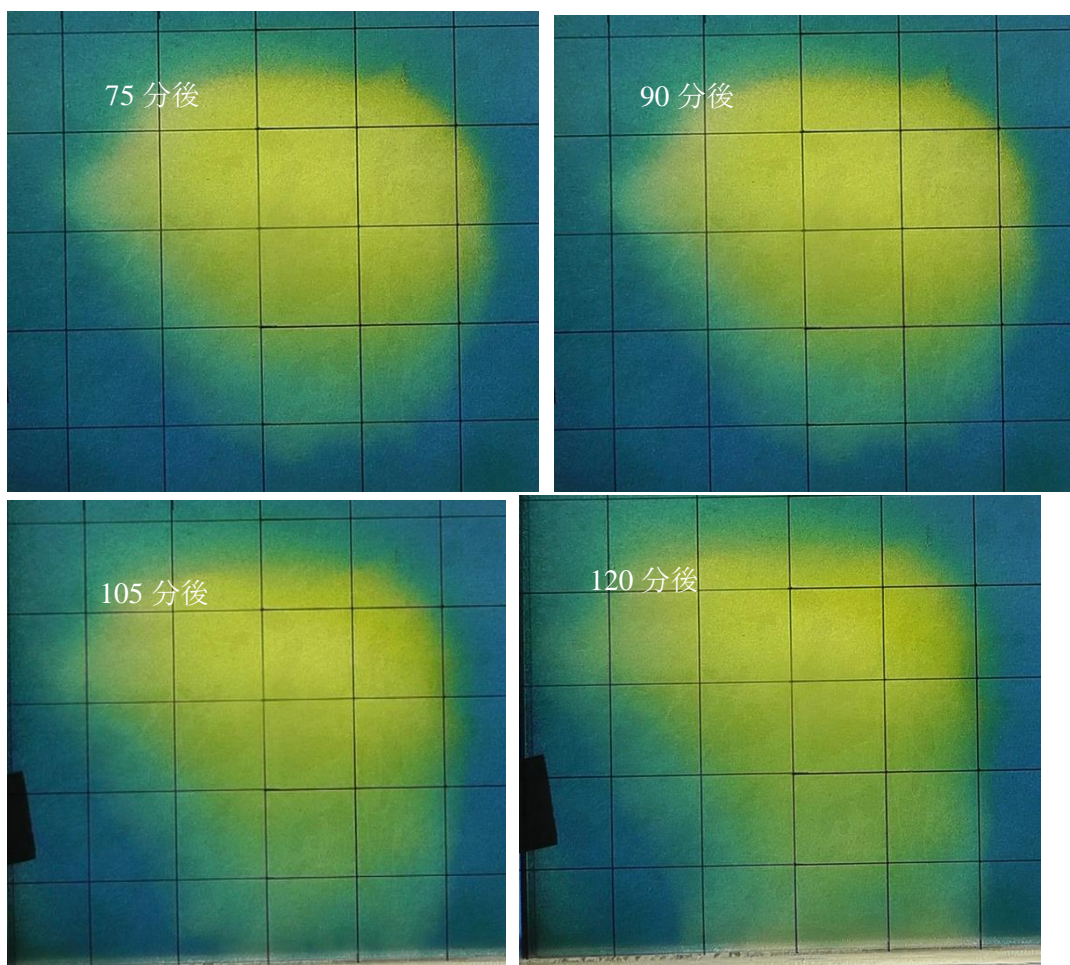
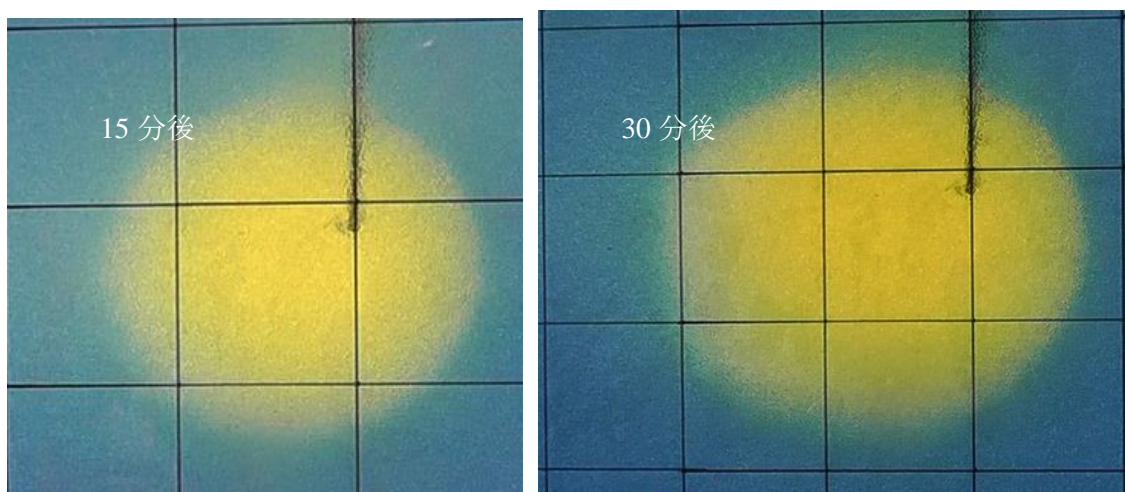


図 3.3  $\pi_1 = 1.48$ のときの 15 分間隔の色の变化の様子



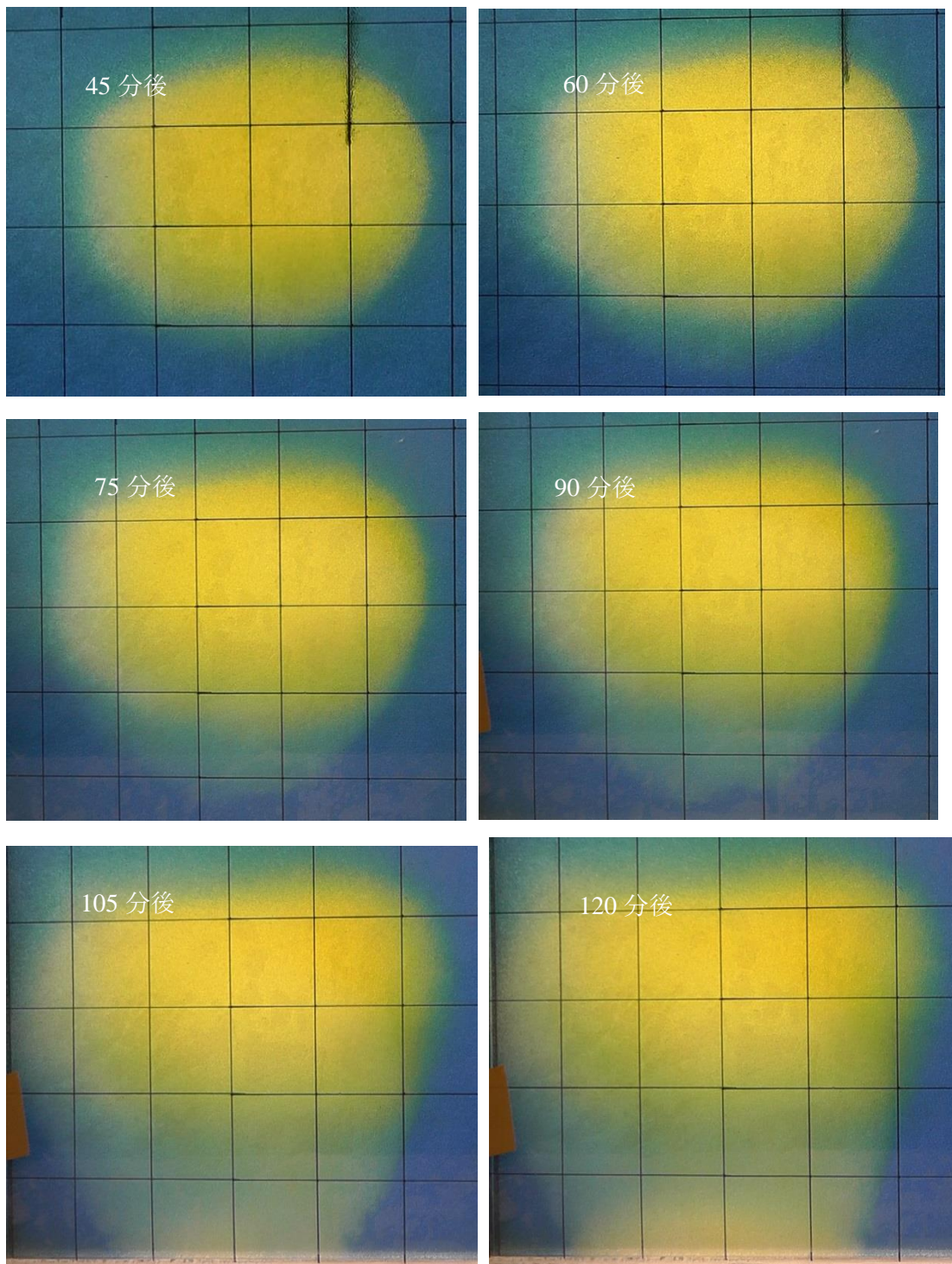


図 3.4  $\pi_1 = 1.38$ のときの 15 分間隔の色の变化の様子

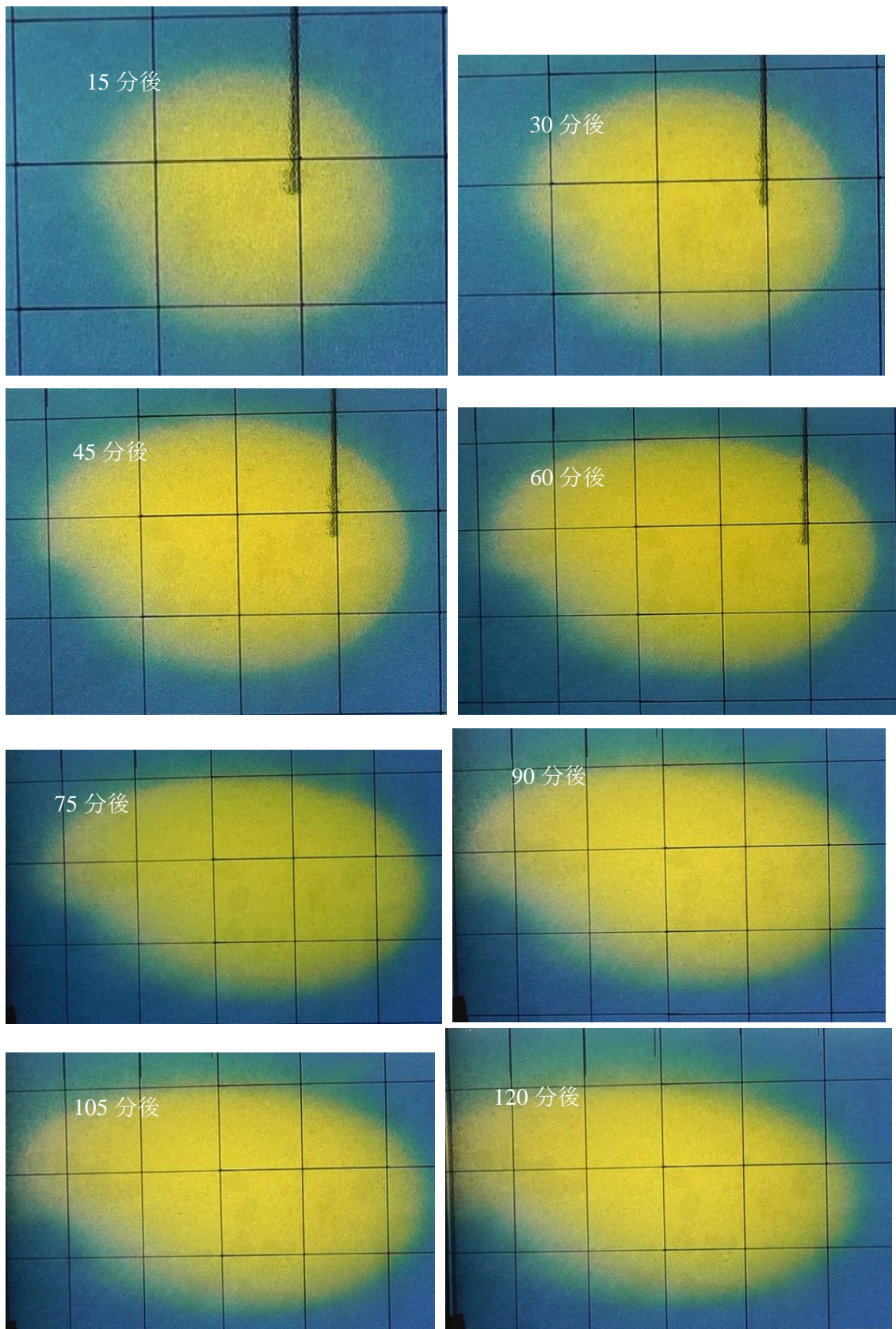
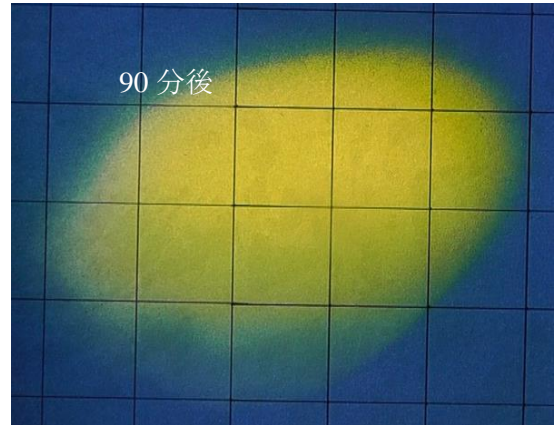
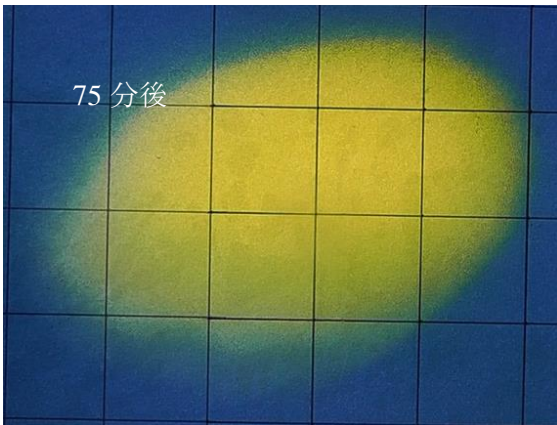
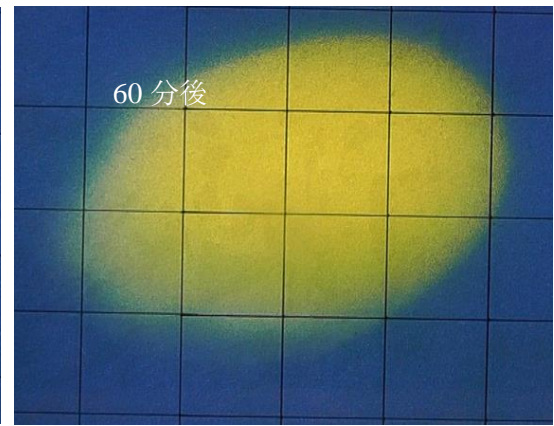
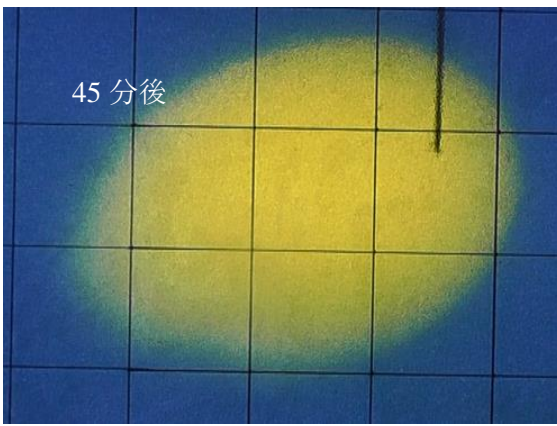
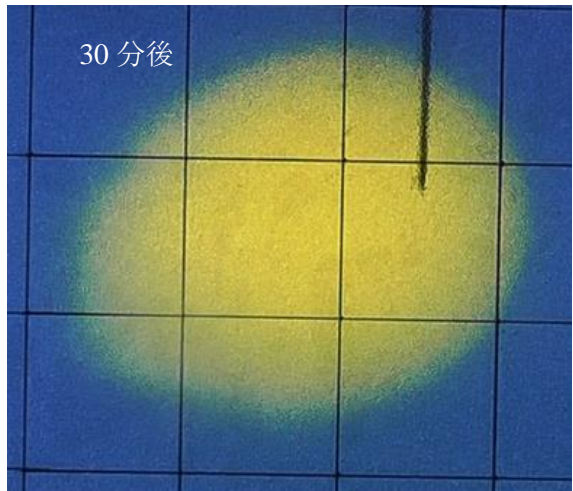
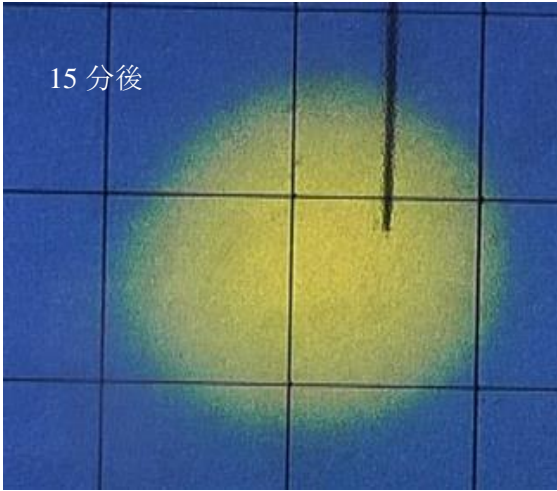


図 3.5  $\pi_1 = 1.16$  のときの 15 分間隔の色の变化の様子





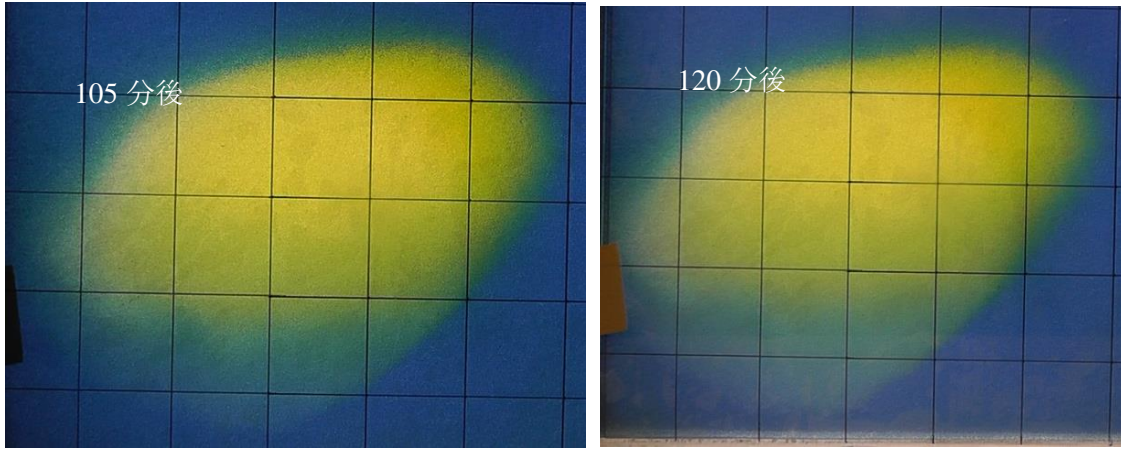
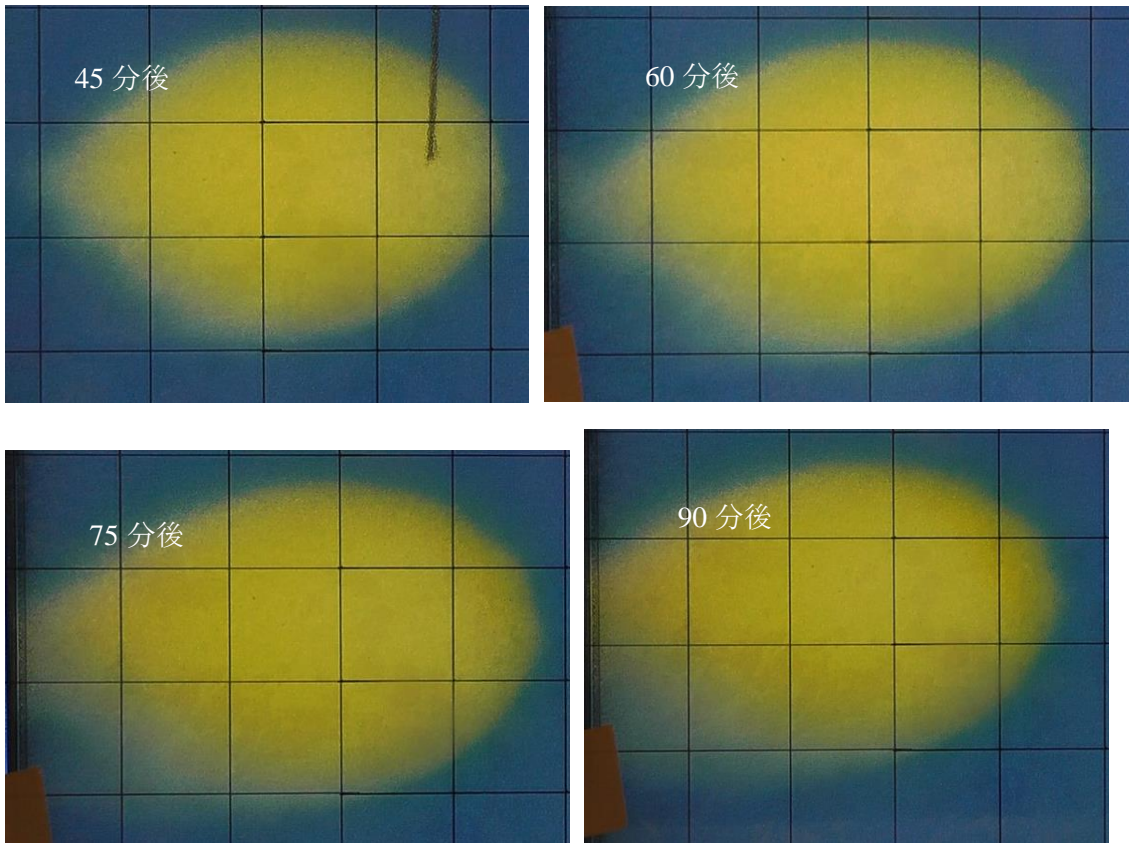


図 3.6  $\pi_1 = 1.00$ のときの 15 分間隔の色の变化の様子



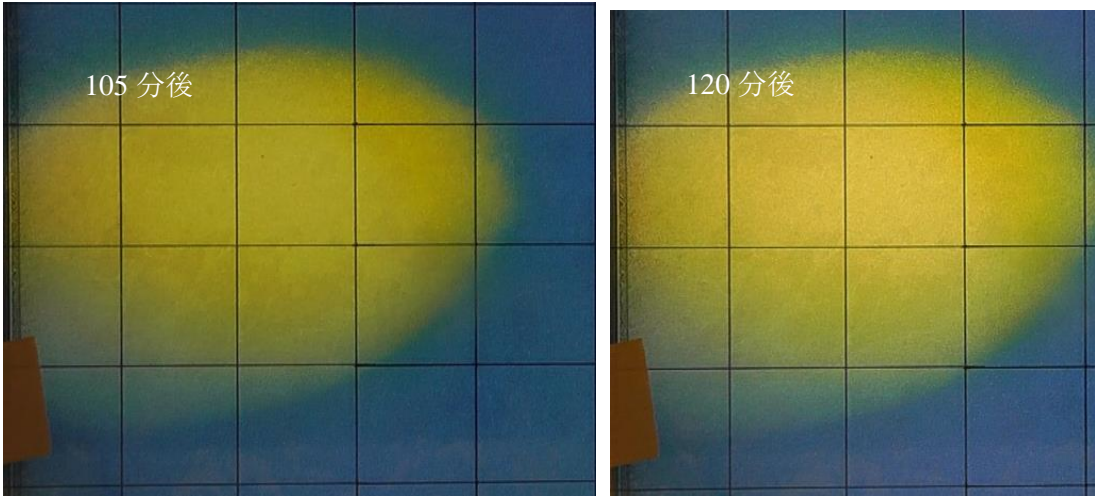
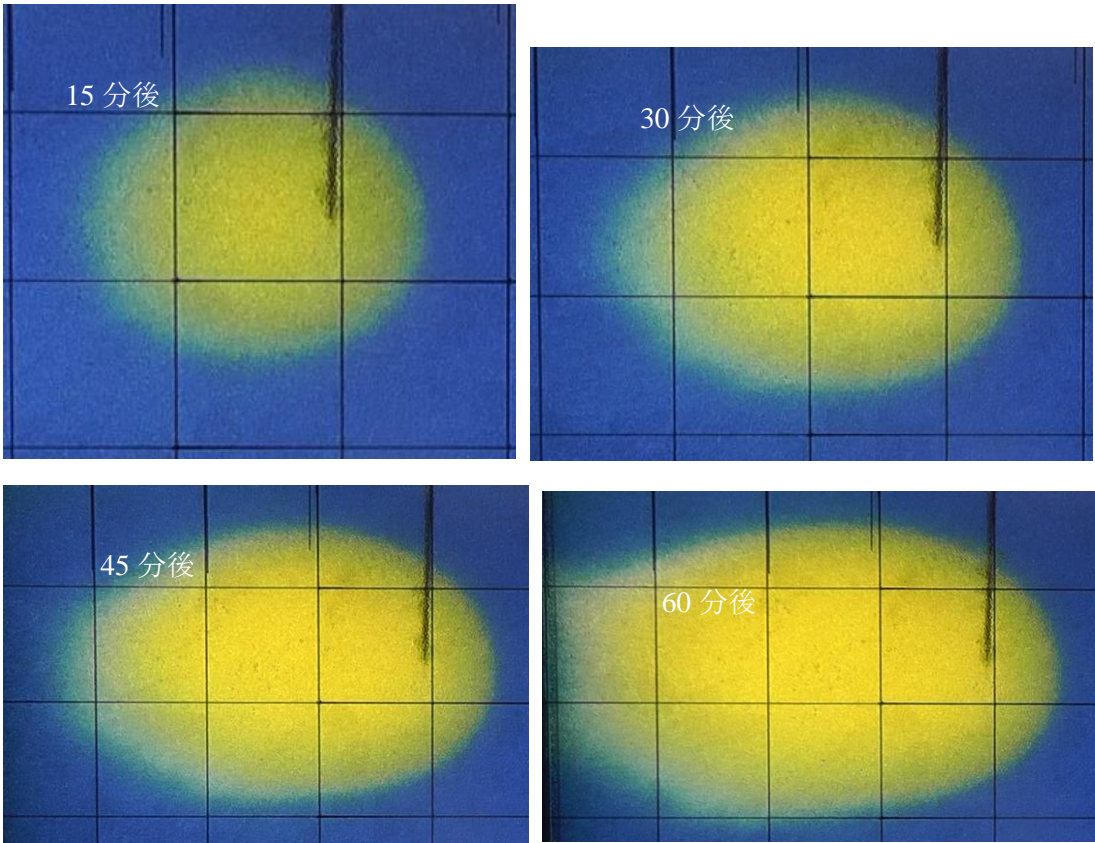


図 3.7  $\pi_1 = 0.83$ のときの 15 分間隔の色の变化の様子  
 (図 3.7 に関しては、データ消失のため 15 分後および 30 分後の画像を割愛した)



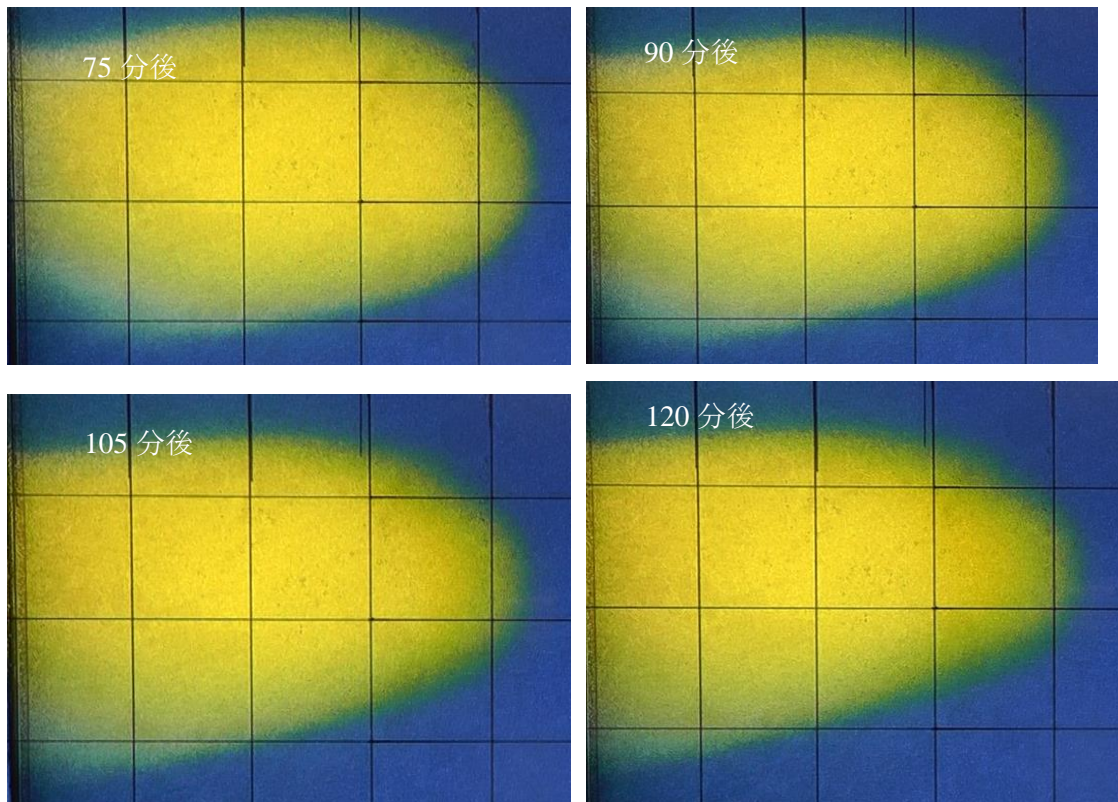
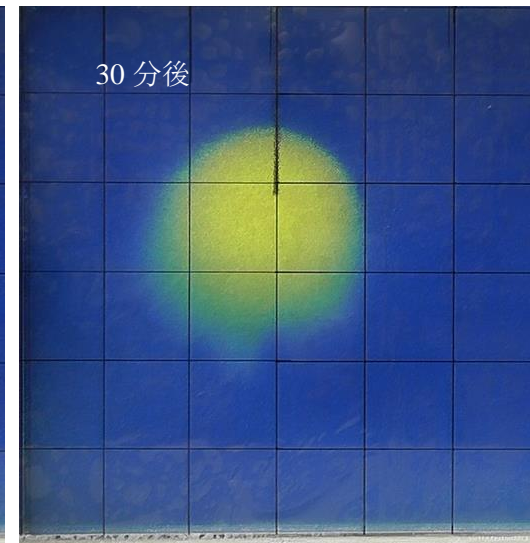
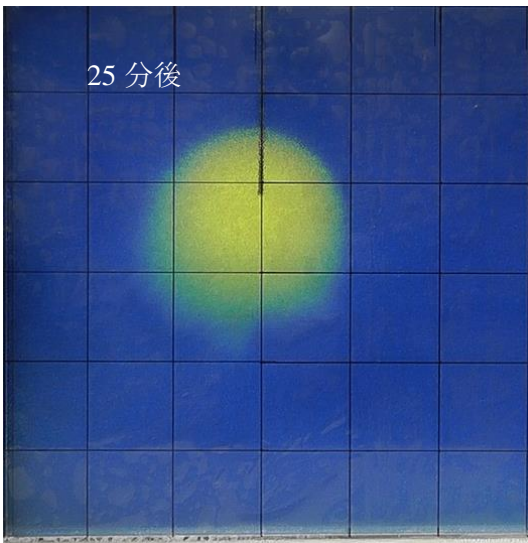
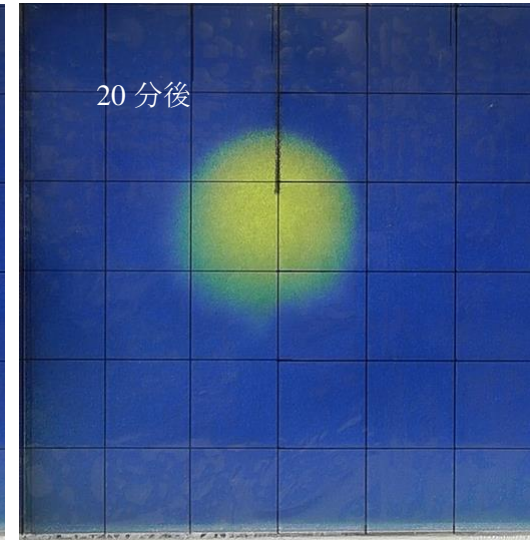
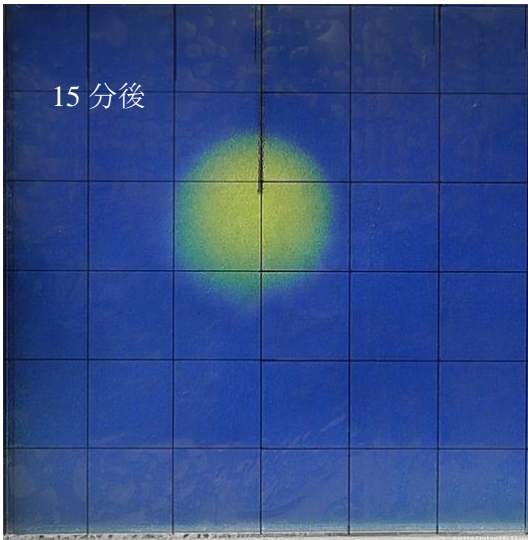
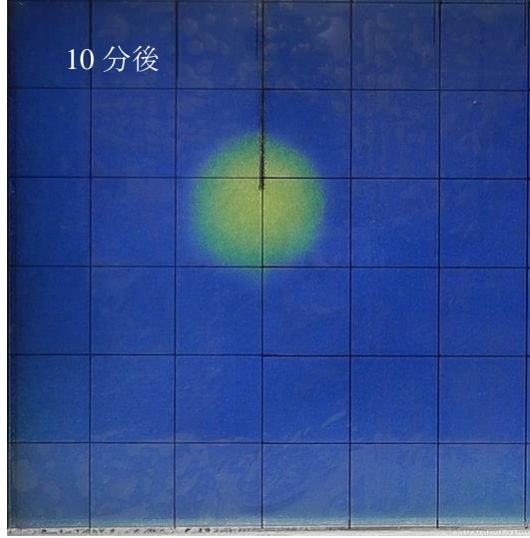
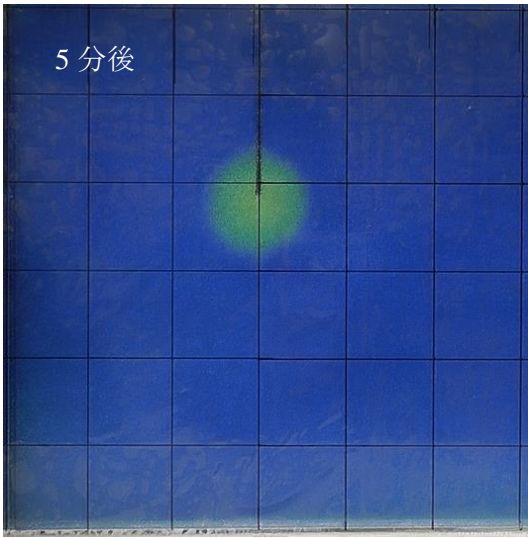


図 3.8  $\pi_1 = 0.50$ のときの 15 分間隔の色の变化の様子

### 3.2 実験結果と Dtransu によるシミュレーション結果の比較

水槽を用いて行った実験における 5 分間隔の色の变化の様子を、図 3.9 に示す。

Dtransu を用いて実験条件の再現を行ったシミュレーション結果を図 3.10 に示す。なお、各シミュレーション結果においては、最外部の青色部分の濃度を 0 とし、以降色が変わるとに 10% ずつ濃度が上がり、中央部の赤色において 100% (= 注入時の濃度) となることを示す。



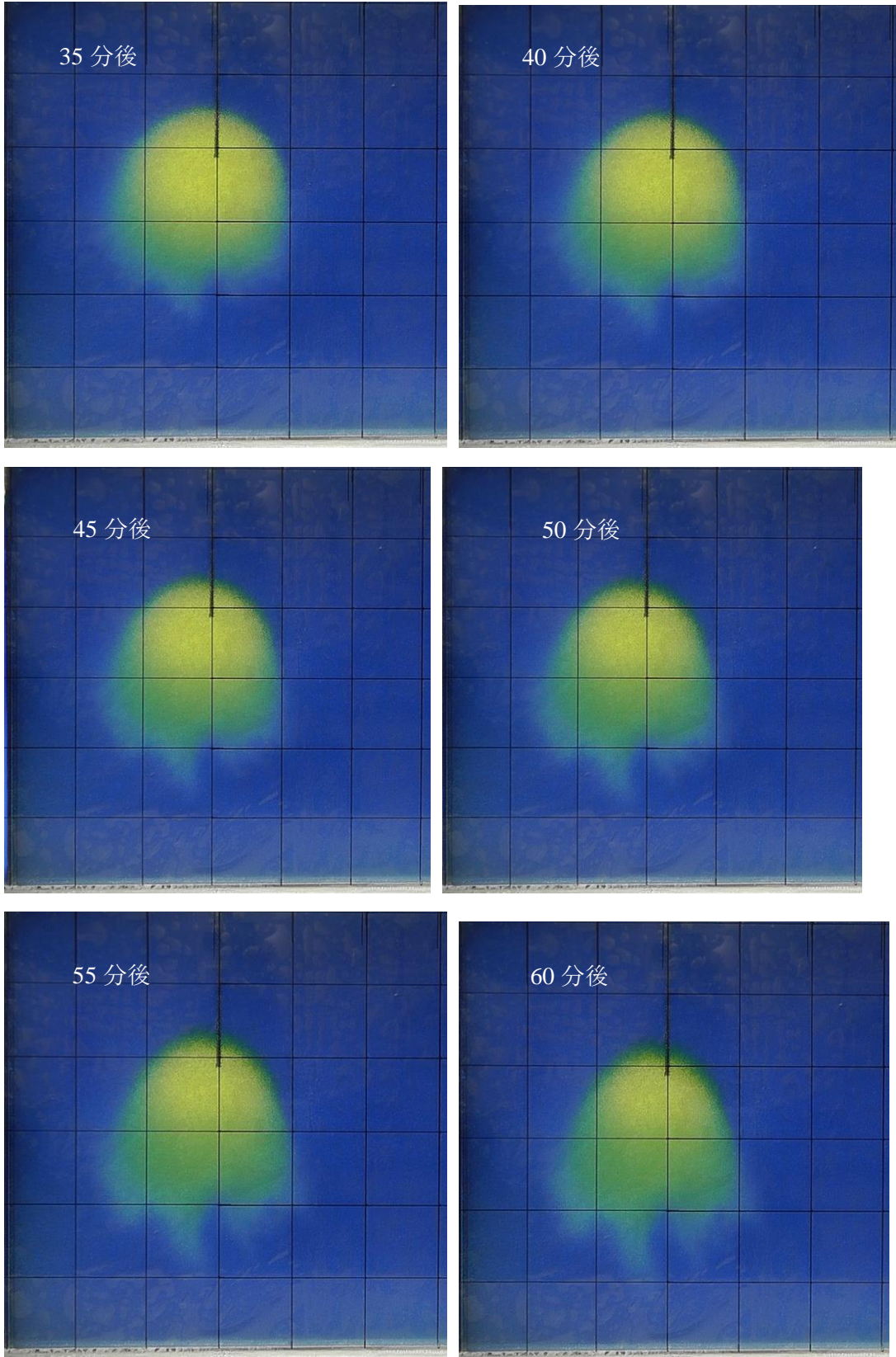


図 3.9 5 分間隔の色の变化の様子

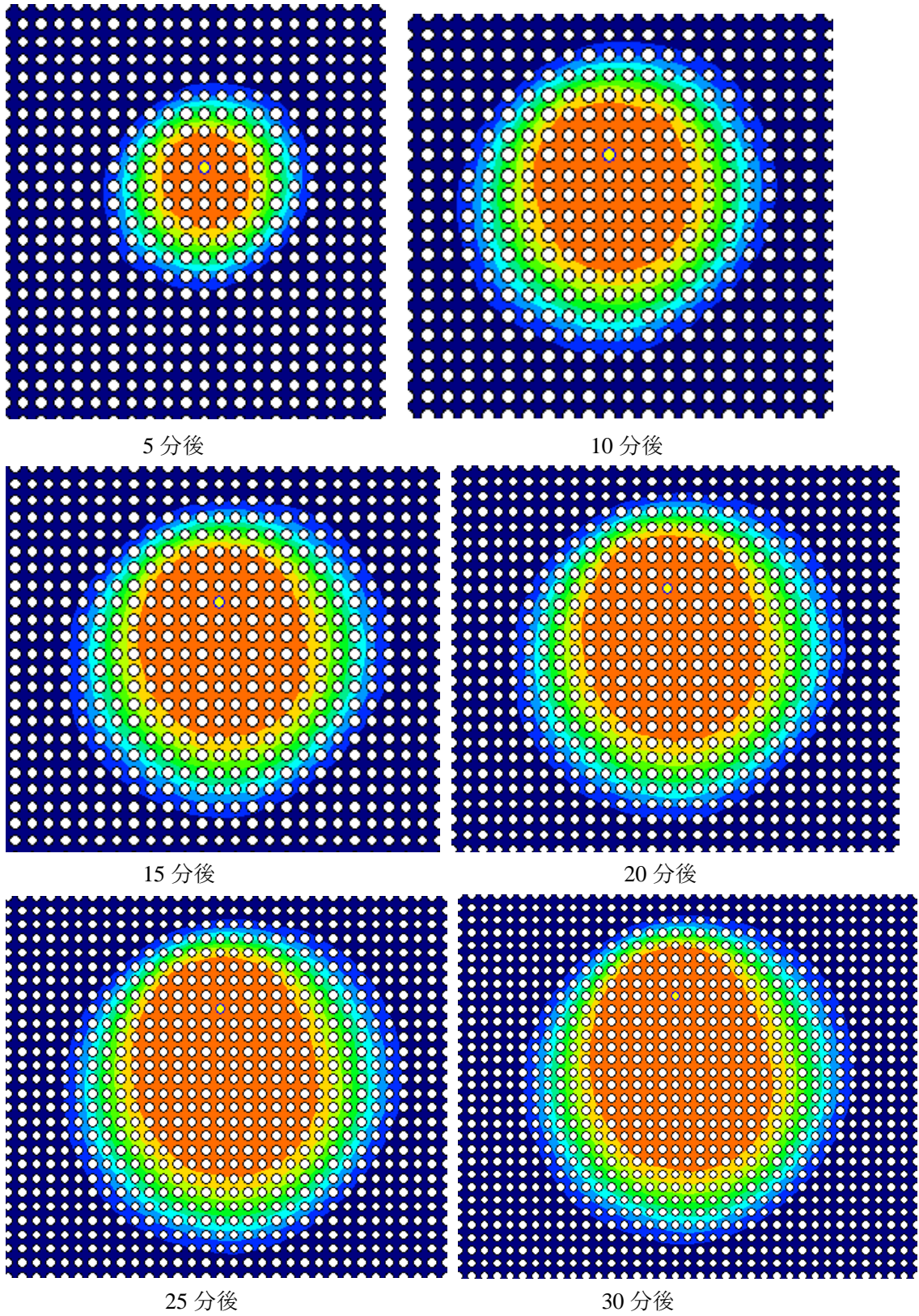


図 3.10 Dtransu を用いた注入中のシミュレーション結果(5 分間隔)

## 4. 考察

### 4.1 CMSの実現可能性に関する考察

水槽を用いて行われた  $\text{CO}_2$  溶解水の挙動観察実験においては、いずれの場合も  $\text{CO}_2$  溶解水が重力方向に移動していく様子が観察された。今回の実験群において使用された  $\text{CO}_2$  溶解水の濃度は、大気圧下の  $20^\circ\text{C}$ における  $\text{CO}_2$  飽和溶解量の半分以下であり、実際に CMS を行う際はより密度の高い  $\text{CO}_2$  溶解水の注入が行われると考えられることから、沈降を妨げるような移流が存在しないような条件においては、CMS によって少なくとも短期的な  $\text{CO}_2$  の貯留が可能であると言える。また、地下に  $\text{CO}_2$  溶解水を注入する場合、注入する深度にもよるが、地下は大気圧よりも大きな圧力がかかっているため、大気圧下では不可能なほど高濃度の  $\text{CO}_2$  溶解水を注入することが出来ると考えられる。このことも、注入した  $\text{CO}_2$  溶解水の沈降を促進すると考えられる要因の一つであり、CMS の実現可能性を支持すると考えられる。

### 4.2 無次元数 $\pi_1$ による流動状態の分類

図 4.1 に、水槽を用いて行われた各実験における流動状態を、 $\pi_1$  の値を用いて分類したものを示す。図 4.2, 4.3, 4.4 に、各流動状態の代表例を示す。なお、図 4.2~4.4 に示された流動状態は、実験開始から 105 分後のものを抜粋した。

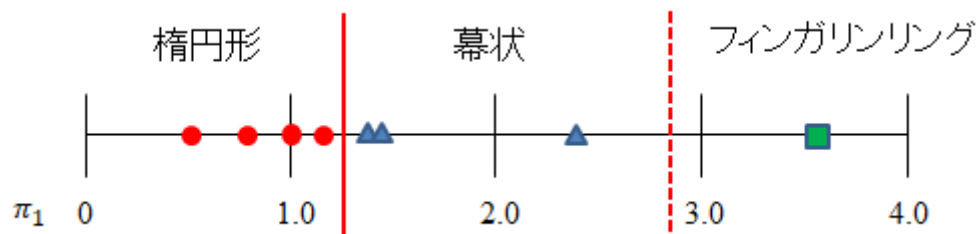


図 4.1 無次元数 $\pi_1$ による流動状態の分類



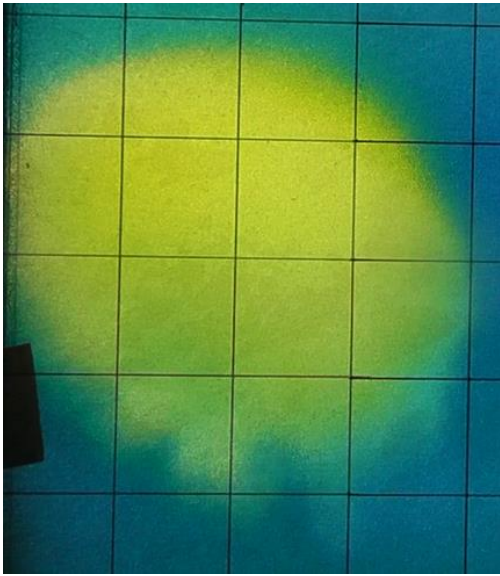


図 4.2 フィンガリング( $\pi = 3.63$ )

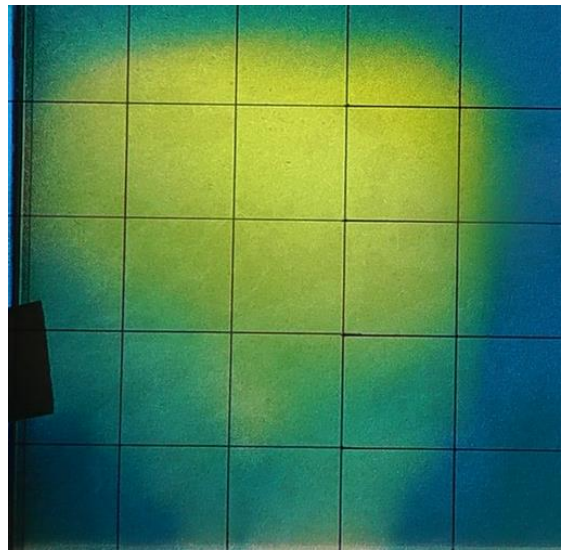


図 4.3 幕状の流動状態( $\pi = 2.37$ )

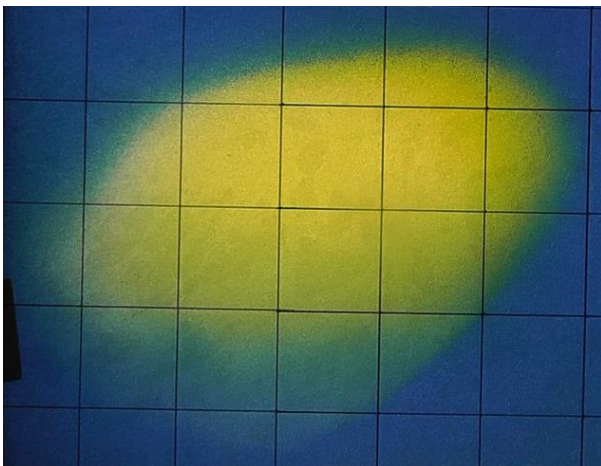


図 4.4 楕円状の流動状態( $\pi = 1.00$ )

水槽を用いた  $\text{CO}_2$  溶解水の挙動の観察実験の結果から、 $\pi_1 = 1.3$ 程度よりも小さい条件下では、注入した  $\text{CO}_2$  溶解水は楕円状に広がることが分かった。これは、 $\text{CO}_2$  溶解水の濃度が減少したこと、あるいは水平方向の移流が大きくなったことで、密度差による沈降の影響よりも水平方向の移流の影響が支配的となり、安定的な流動状態となったためであると考えられる。また、 $\pi_1 = 3.0$ 程度よりも大きい条件下では、 $\text{CO}_2$  溶解水がフィンガリングを発生させながら沈降していくことが分かった。これは、楕円状に広がるときとは逆に、 $\text{CO}_2$  溶解水の濃度が増加したことや、水平方向の移流が小さくなったことで、 $\text{CO}_2$  溶解水の挙動に対して密度差の与える影響が支配的となったためであると考えられる。両者の中間である  $\pi_1 = 1.3 \sim 3.0$  の範囲においては、 $\pi_1$  の値が減少するにつれて、はっきりとしたフィンガリ

ングの様子は見られなくなっていったものの、重力方向に凹凸を作りながら沈降し、幕のような形で広がっていく様子が観察できた。

### 4.3 Oostrom らの実験結果との比較

Oostrom らの研究においては、注入された高密度流体の安定性が変化するときの $\pi_1$ の値は0.3であるとされており、また、1.3.3で行った再計算後の値も0.4程度であった。それに対して、今回行った実験において、フィンガリングの有無が変化する際の $\pi_1$ の値は $\pi_1 = 1.16 \sim 1.38$ の間であった。 $\pi_1$ の値は流体に対して働く水平方向の力と垂直方向の力の大きさの比を表したものであり、この値が小さければ小さいほど、垂直方向の力が相対的に大きくなり、不安定な流動状態になりやすく、フィンガリングが見られやすいと考えられる。従って、今回の実験結果は、Oostrom らの実験結果と比較して不安定な流動状態になりやすかったと言える。この差については複数の原因があると考えられるが、大きな要因の一つは、今回の実験においては、注入流体と純水の密度差 $\Delta\rho$ と水の密度 $\rho_0$ の比を表す数値である $\Delta\rho/\rho_0$ の値が、Oostrom らの実験におけるものと比べて非常に小さいことが挙げられ

る。今回の実験においては、最大の $\Delta\rho/\rho_0$ の値が $6.67 \times 10^{-4}$ 程度であるのに対し、表 1.2を参照すると、Oostrom らの実験においては最低でも $1.0 \times 10^{-3}$ であり、最大では $3.6 \times 10^{-2}$ である。1.3.3で述べた通り、実際の系においては表面張力の影響から、レイリー・テイラー不安定性によって増大される擾乱の波数は制限される。式(1.21)によれば、高密度流体と低密度流体の密度差である $(\rho_2 - \rho_1)$ の値が小さくなればなるほど、増大される擾乱の波数の範囲は小さくなる。今回の実験においては地下水流が存在するため、式(1.21)にそのまま当てはめることは不可能であるが、本研究においては、Oostrom らの実験と比較して、増大される擾乱の波数が制限されていたため、不安定な状態が発生しづらかったのだと考えられる。無次元数 $\pi_1$ は、Oostrom らの研究が示すように、粒径や透水係数が異なっても不安定性の有無を判断する一つの基準となり得るものではあるが、密度差の小さい範囲では、密度差の大きい範囲と同じ基準を用いることが出来ないと考えられる。

### 4.4 実験結果と Dtransu によるシミュレーション結果の比較

図 3.9 と図 3.10 を比較すると、注入開始 15 分後程度までにおいては非常によく似た結果が得られている。どちらも $\text{CO}_2$ の存在領域は、重力方向に伸びた円形となっており、注入した部分から $\text{CO}_2$ 存在領域の下端までの距離も概ね等しい。例えば、図 3.9 において黒線の間隔が 5 cm であり、図 3.10 においては隣接する白丸の中心間隔が 0.5 cm であることに留意すると、実験結果では 5 分後の段階で注入部分から 4 cm 程度下に変色領域の下端が存在し、同時刻のシミュレーション結果においては注入部分から 3.5 cm 下に $\text{CO}_2$ 存在領域の下端が存在する。また、15 分後の段階で比較を行うと、どちらも下端が注入部分から 7.5 cm 程度

の位置に存在する。しかし、30分後の様子の比較を行うと、実験結果においては変色領域の下部が波状に変化しはじめているのに対し、シミュレーション結果においては円形になっている。図 3.9 から、注入終了後は、波状に変化した部分が成長していくことが確認できるため、波状の変化は、レイリー・テイラー不安定性に起因するものと考えられる。したがって、今回の設定条件においては、Dtransu でレイリー・テイラー不安定性による CO<sub>2</sub> の挙動を再現することは不可能であったといえる。これは、シミュレーションにおいては装置内における不均質性を表現するために間隙率に分布を与えているものの、レイリー・テイラー不安定性を発生させるだけの擾乱を作るに至らなかったことが理由として考えられる。

## 5. 結論および今後の展望

本研究では、二酸化炭素マイクロバブル地中貯留における二酸化炭素の挙動を明らかにすることを目的として水槽を用いた実験が行われた。その結果、注入された  $\text{CO}_2$  溶解水が沈降する様子が確認され、CMS の実現可能性が示唆された。また、無次元数  $\pi_1$  を用いて流動状態の分類が行われた。その結果として、 $\pi_1 = 1.3$  を境界として、それよりも大きい範囲ではレイリー・テイラー不安定性の見られる流動状態であり、小さい範囲では安定した流動状態であると分かった。この結果は、先行研究で得られた結果と異なるものであるが、本研究で行われた実験においては、流体間の密度差が比較的小さく、レイリー・テイラー不安定性により増幅される擾乱の波数が制限されたことから、不安定性が発現しづらかったことが原因であると考えられる。また、シミュレーションによって  $\text{CO}_2$  の挙動をより正確に再現するための方法を明らかにするために、Dtransu を用いたシミュレーションと実験結果の比較を行った。その結果、今回の設定条件では、Dtransu によるレイリー・テイラー不安定性の再現が出来なかった。このことから、CMS を実施した際の注入後の地下水における  $\text{CO}_2$  の挙動を正確にシミュレーションすることの困難性が示唆された。

本研究では、注入流体と地下水の密度差が非常に小さい範囲で実験が行われた。しかし、実際に CMS を実施する際には、地中の高圧状態を考慮すると、同体積の地下水に大気中の数十倍の  $\text{CO}_2$  が溶解すると考えられるため、注入井付近における流動状態を予測するために、より密度差の大きい範囲での実験が行われるべきである。それらの結果をシミュレーターによる結果と比較することによって、シミュレーション結果の評価を行うことや、より正確な結果を得られるような条件設定を見つけることが出来ると考えられる。このことは、CMS のみならず従来の CCS の  $\text{CO}_2$  挙動シミュレーションの信頼性向上および計算負荷軽減につながるものと考えられる。

## 謝辞

本研究の進行にあたり、何よりもまず指導教員である愛知正温講師には大変お世話になりました。研究テーマの選定から、研究の進行の方向性、結果の解析方法にわたり、多くの場面でご指導を頂きました。厚く御礼申し上げます。

また、(株)大林組様には、研究資金の面において大変お世話になりました。貴社の多大なる援助により、炭酸ガス電極などの比較的高額な機器の購入が出来たものと考えております。深く御礼申し上げますとともに、2年間で結果を出すに至らなかったことに関して深くお詫び申し上げます。

さらに、茂木勝郎様には、実験装置の作成およびメンテナンスにおいて大変お世話になりました。本研究のメインとなる実験結果は、茂木様の協力なしには得られなかったものであります。ここに深く御礼申し上げます。

加えて、愛知研究室の学生の皆様は、ゼミで様々な助言をくださいました。それだけでなく、日常的な会話や、ボードゲームによって研究生活に彩りを与えてくださいました。ここに深く御礼申し上げます。

最後に、本研究に関わってくださった全ての方に対する感謝を申し上げて、謝辞に代えさせていただきます。

## 参考文献

- 1)環境省(2014)IPCC 第5次評価報告書の概要-第一作業部会(自然科学的根拠)-  
[https://www.env.go.jp/earth/ipcc/5th/pdf/ar5\\_wg1\\_overview\\_presentation.pdf](https://www.env.go.jp/earth/ipcc/5th/pdf/ar5_wg1_overview_presentation.pdf) (2019年1月20日閲覧)
- 2)環境省(2006)中央環境審議会地球環境部会気候変動に関する国際戦略専門委員会 CO<sub>2</sub> 回収・貯留技術(CCS)について(審議経過の整理)  
<http://www.env.go.jp/council/06earth/r064-03/ccs.pdf> (2019年1月20日閲覧)
- 3)(独)産業技術総合研究所二酸化炭素回収・貯留に関する IPCC 特別報告書(日本語版)  
<https://hub.globalccsinstitute.com/sites/default/files/publications/114681/carbon-dioxide-capture-and-storage-report-japanese.pdf> (2019年1月20日閲覧)
- 4)伊藤渉,大隅多加志,金久保光央,小牧博信,佐藤徹,中島康晴,西尾匡弘,藤井康正,峯元雅樹,八木靖幸,山本正隆(2009) CO<sub>2</sub> の分離・回収と貯留・隔離技術～低炭素社会を実現するテクノロジーと展望～ 株式会社エヌ・ティー・エス p.147~163
- 5)公益財団法人地球環境産業技術研究機構(RITE)RITE における CCS 技術の現状と課題  
[http://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/sangi/ccs\\_kondankai/pdf/001\\_05\\_00.pdf](http://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/sangi/ccs_kondankai/pdf/001_05_00.pdf) (2019年1月20日閲覧)
- 6)村井重夫 藤岡雄一(2007), 二酸化炭素の分離回収・貯蔵への挑戦, 電気学会誌 127 巻 4 号, p.237~245
- 7)鈴木 et al. (2013), 分散型 CO<sub>2</sub> 地中貯留の可能性について, 大林組技術研究所報 No.77
- 8)宮澤大輔ら, CO<sub>2</sub>MB 注入法に関する基礎的研究-CO<sub>2</sub>MB 注入法による CO<sub>2</sub> 溶解の特徴-(2011), Journal of MMIJ vol.127 p.189-193
- 9)大成建設 山本肇(2011)二酸化炭素地下貯留に関する大規模シミュレーション技術の開発  
[https://www.jamstec.go.jp/es/jp/info/sangyou23\\_pdf/p07.pdf](https://www.jamstec.go.jp/es/jp/info/sangyou23_pdf/p07.pdf) (2019年1月20日閲覧)
- 10)福江純・和田桂一・梅村雅幸(2014), 宇宙流体力学の基礎, 日本評論社, p.248~253
- 11)M.Oostrom et al. (1992), Behavior of Dense Aqueous Phase Leachate Plumes in Homogeneous Porous Media, WATER RESOURCES RESEARCH VOL.28 NO.8, p.2123-2134
- 12)日本地下水学会(2010),地下水シミュレーション これだけは知っておきたい基礎理論, 技報堂出版, p.66~74