

CO₂ 鉱物固定機構の数値解析的基礎検討A basic study on the mineral trapping process of CO₂ through numerical simulations

佐々木 宗建 [1]; 奥山 康子 [2]; 徂徠 正夫 [3]; 中尾 信典 [4]; 柳澤 教雄 [3]; 金子 信行 [2]

Munetake Sasaki[1]; Yasuko Okuyama[2]; Masao Sorai[3]; Shinsuke Nakao[4]; Norio Yanagisawa[3]; Nobuyuki Kaneko[2]

[1] 産総研・地圏資源; [2] 産総研地質調査総合センター; [3] 産総研・地圏資源; [4] 産総研

[1] AIST, GeoResour. Dep.; [2] Geological Survey of Japan, AIST; [3] AIST; [4] Geological Survey of Japan, AIST

地球温暖化ガスである CO₂ の地中貯留には 4 種類の閉じ込め機構 (地質構造による閉じ込め、物理的閉じ込め、溶解による閉じ込め、鉱物固定による閉じ込め) が関与する。このうち鉱物固定による閉じ込めは、貯留層への CO₂ 注入後長時間が経過した後に機能すると考えられている。本研究ではこの鉱物固定による閉じ込め機構を、仮想的地下水 - 帯水層砂岩 - CO₂ 系の地化学的数値模擬実験によって平衡論的及び速度論的に検討した。

(1) 平衡論的模擬実験

実験手順は、地下水と帯水層砂岩とを温度 50 °C 一定で反応させて特定の孔隙率 (0.4) を有する流体/鉱物系を生成し、この系に CO₂ を注入して鉱物固定される CO₂ 量を算出する、とした。計算には地化学ソフト GWB (The Geochemist's Workbench: Bethke, 1996) を用い、計算の初期値には関東平野の平均水質 (奥山ほか、2007) と、Togashi et al. (2000) にまとめられた房総地域の砂岩の平均組成を用いた。但し、計算上、環境因子を内因的に制御できるように砂岩組成に炭素 (0~10wt.%) を添加した。また、計算対象とした鉱物種は堆積岩に比較的普遍的なものを採用した。

実験結果は次の通りであった。(i) 初期値として地下水が溶存する成分量より岩石が含有する成分量のはるかに多いので、地下水水質は計算結果に殆ど影響しなかった。(ii) 炭素添加量約 1~2wt.% で生成した流体/鉱物系が天然系に比較的対比でき、炭素添加量がこれより少ないと流体はアルカリ性 pH を示し、多いと中性 pH を示すが系には炭酸塩鉱物が多量に晶出した。(iii) CO₂ 注入に伴う鉱物種の変化は、斜長石、スメクタイト、カオリナイト、スメクタイト

ドロマイトまたはシデライト、曹長石、ドーソン石であり、カリ長石は反応に殆ど関与しなかった。(iv) CO₂ 注入後に系が固定し得た総 CO₂ 量は体積比で約 0.2 であり、CO₂ 注入前に系に炭酸塩鉱物が存在すると (炭素添加量が多い場合)、CO₂ 注入時の実効的固定量が相対的に低下した。(v) CO₂ を固定し得る炭酸塩鉱物種の組み合わせを変えると、固定に関与し得る陽イオン種が変化するため、総固定量は大きく変化した (方解石+ドロマイト+シデライトドーソン石 150-180kg/m³、方解石のみ 50kg/m³ 以下)。

(2) 速度論的模擬実験

海水を温度 50 °C、圧力 100bars にて CO₂ に飽和した後に砂岩と反応させ、水質と鉱物種および CO₂ の鉱物固定量の経時変化を追跡した。計算には地化学ソフト TOUGHREACT (ECO₂ モジュール: Xu et al., 2006) を用い、海水組成には北野 (1995) を、砂岩組成には Togashi et al. (2000) による本邦の平均値を用いた。また、鉱物種の反応速度には Palandri and Kharaha (2004) の編集結果等を参照し、砂岩中の鉱物粒子は種類によらず 0.5mm の球形で、その反応表面積は 450cm²/g と基本的に仮定した。

反応開始後 1,000 年まで追跡した結果は次の通りであった。(i) 流体の pH は約 10 年で上昇し始め、アルカリ性を示し、約 800 年後に中性 (pH7~8) へと低下した。(ii) 系内の斜長石は数年後と約 400 年後とに二段階で減少し、前者はドーソン石への変質、後者はドーソン石と共に曹長石と方解石への変質に起因した。(iii) これらの間の孔隙率の変化は 0.01 程度で、CO₂ 固定量は約 20kg/m³ であった。(iv) 鉱物粒子の反応表面積を一桁大きくすると現象が一桁早く進行した。

以上 2 つの模擬実験結果は CO₂ の鉱物固定による閉じ込めが可能であることを示唆しているが、今後の数値解析に関わる次のような指摘も得られた。(a) 主な反応過程: CO₂ の鉱物固定には斜長石の炭酸塩化が重要な反応過程である。(b) 二次成鉱物の選択: 平衡論では CO₂ を固定できる鉱物種が多様であるほど固定総量が増加したが、速度論ではそれらが中間生成物なのか最終生成物なのかを判断する必要がある (得にドーソン石)。(c) 主な感度依存性: 速度論では CO₂ の鉱物固定の過程は鉱物粒子の反応表面積の設定に大きく依存する。また、(d) 初期流体/鉱物系の設定: 天然系では地下水と鉱物種とが必ずしも地化学的平衡状態に無い可能性があり、CO₂ 注入のために設定する流体/鉱物系において初期値とする地下水水質を変化させないような鉱物種の組み合わせを設定し得るのかどうか吟味を要する。