

MIS020-P04

会場: コンベンションホール

時間: 5月24日 10:30-13:00

二酸化炭素固定化に向けた水酸化カルシウム結晶の溶解・成長速度測定 In situ measurement of dissolution and growth velocities of $\text{Ca}(\text{OH})_2$ for CO_2 trapping

大島 嘉文^{1*}, 塚本 勝男¹, 三浦 均¹, 木村 勇気¹, 佐藤 久夫²
Yoshifumi Oshima^{1*}, Katsuo Tsukamoto¹, Hitoshi Miura¹, Yuki Kimura¹, Hisao Satoh²

¹ 東北大学理学研究科地学専攻, ² 三菱マテリアル株式会社
¹Tohoku university, ²Naka Energy Research Laboratory, Mitsubishi

昨今地球温暖化問題が取りざたされる中, 対策技術として CCS(Carbon dioxide Capture and Storage) が注目を浴びている. CCS は二酸化炭素を回収後, 地中や海中に貯蔵・固定する技術を指すが, その固定法の 1 つに鉱物固定が挙げられる. これは二酸化炭素をカルサイトなどの地球上で安定な鉱物として地中や海中に固定化するもので, 二酸化炭素の長期間の安定貯蔵が期待されている. カルサイトを生成する 1 つの反応として, 水酸化カルシウム結晶に炭酸イオンを含む溶液を反応させ, カルサイトを生成するという方法がすでに考えられている (Lackner et al., 1995). しかし水酸化カルシウム結晶がカルサイトに置換・成長する速度は分かっておらず, またこの反応の出発物質である水酸化カルシウム結晶の成長・溶解速度も分かっていない. そこで本研究はカルサイト化による二酸化炭素固定の速度を解明するために, 反応に関わる重要な物質である水酸化カルシウムの (001) 面の成長・溶解速度を その場 観察によって求めることを目的とした.

面成長・溶解速度測定には位相シフト干渉計を用いた. 位相シフト干渉計は垂直分解能 $w/(2n \times 255) \text{ nm}$ ($w = 532 \text{ nm}$, $n = 1.333$) を持ち, nm/s の成長・溶解速度を測定することができる. 0.25 M CaCl_2 溶液, 0.50 M NaOH 溶液, 2.0 M NaCl 溶液と純水を混ぜ合わせることで, 過飽和度を $-0.46 \sim 0.29$ の範囲で変化させながら, 水酸化カルシウム結晶 (001) 面の結晶成長・溶解速度を測定した.

面成長速度の過飽和度依存性より, 本実験で採用した過飽和度の範囲における水酸化カルシウム結晶の成長様式は多核成長であることが推測された. 多核成長時に形成される二次元核の縁の単位長さ当たりのステップエッジエネルギー $= 1.093 \times 10^{-11} \text{ J/m}$ を初めて求めることができた. この値は, 先行研究 (Teng et al., 2000) で得られたカルサイト (10-14) 面の面成長速度から求めたステップエッジエネルギーよりも小さい. これはカルサイト (10-14) 面よりも低い過飽和度領域において多核成長をする理由であると考えられる.

さらに, 鉱物による二酸化炭素固定メカニズムの解明に向けて, 水酸化カルシウム結晶の面溶解速度の測定結果に基づき, 水酸化カルシウム結晶とカルサイト共存系において, 水酸化イオン濃度, 炭酸イオン濃度一定の条件のもとで Ca イオン濃度 (過飽和度) を変化させた時の, 水酸化カルシウム結晶の溶解挙動について推測することができた. 共存系では, 上の条件のもと, 水酸化カルシウム結晶, カルサイトに対してどのような過飽和度条件を想定しても, つまりカルサイトにとって未飽和な条件を設定しても水酸化カルシウム結晶の溶解に伴う, Ca イオンの供給によって, カルサイトがいずれは成長に転じるということを推測できた. つまり, 共存系であれば二酸化炭素は必ずカルサイトとして固定されると予想される.

本研究では水酸化カルシウム結晶の (001) 面成長・溶解速度の過飽和度依存性を測定することに初めて成功し, 多核成長時の二次元核形成におけるステップエッジエネルギーを求めることができた. また, 水酸化カルシウム-カルサイト結晶共存系においては, どのような過飽和度条件であっても, いずれはカルサイトが成長することが推測できた. 以上の結果から, 水酸化カルシウム結晶を用いた二酸化炭素の固定化は十分に可能であり, 今後の CCS での鉱物固定では, 水酸化カルシウム結晶は重要な物質の 1 つであることが結論付けられた.

キーワード: 水酸化カルシウム, 炭酸カルシウム, 鉱物固定, 多核成長

Keywords: calcium hydroxide, calcium carbonate, mineral trapping, multi-nucleation