

審査の結果の要旨

氏名 高谷 雄太郎

本研究では、CO₂帯水層貯留の安全性評価と貯留候補地の選定を目的に、貯留層内におけるCO₂-水-岩石反応を再現するための実験システムの作製、反応実験およびCO₂鉱物トラッピング(CO₂の鉱物化)のシミュレーションが行われた。これら一連の研究において、岩石試料については透過顕微鏡による組織および構成鉱物の観察、XRDによる構成鉱物同定、マッフル炉による灼熱減量の測定、XRFによる主成分元素分析が行われ、反応溶液に関してはICP-MSによる主成分・微量元素分析が行われた。得られた分析結果に基づき、貯留層内のCO₂-水-岩石反応進行について詳細な検討がなされた。そして、CO₂貯留層内においては、[CO₂-水-岩石]の3成分系が平衡に至らない限り、溶液組成が一定の状態を保ったまま岩石の溶解および二次鉱物の沈殿反応が進行すること、CO₂鉱物トラッピングが~10²年の時間スケールで支配的なCO₂トラッピングメカニズムとなり得ることを示した。

まず、貯留層内における長期的な反応進行特性を明らかにすることを目的として、8ヶ月におよぶ溶解実験が実施された。その結果、CO₂貯留層内における[CO₂-水-岩石]3成分系の反応は、長期的には溶解と沈殿が釣り合うポイントに地層水の組成が収斂し、岩石の溶解反応や二次鉱物の沈殿反応は、一定の地層水組成条件下で進行することが明らかとなった。長期的な反応進行予測には、上記の一定の地層水条件下における岩石試料の溶解速度を算出する必要があったため、反応溶液が一定の組成に至るまでの反応が詳細に再現され、各岩石試料に特有の“一定の地下水組成条件下”における岩石からの元素溶出速度が算出された。なお、本研究では、先行研究において最大の問題点であった室内と野外実験における反応速度の不一致を解決するため、岩石試料の正確な粒度分けに加え、規定粒度以下の微小粒子の除去が極めて厳密に行われている。岩石試料の粒度と実際の帯水層を構成する岩石の粒度を一致させ、室内実験において反応速度、そして反応比表面積の見積もりを大きく攪乱する規定粒度以下の微粒子が完全に除去されている。その結果、単位質量当たりの岩石から溶出する元素量を正確に議論することが可能となった。

本研究ではさらに、実験により求められたMg, Ca, Feの溶出速度を用いてCO₂固定効率の算出シミュレーションが行われた。この際、初生炭酸塩鉱物の影響を除去するため、上記3元素の溶出速度は、炭酸塩鉱物を予め除去した試料を用いた実験により溶出速度の補正が行われた。本シミュレーションでは、溶出したMg, Ca, Feの全てが炭酸塩鉱物を形成するとし、これらの溶出速度は、先行研究で求められているケイ酸塩鉱物の平均的溶解速度(化学的風化速度)の時間変化率から、約45年で10分の1になると仮定して計算が行われた。その結果、CO₂注入レートを1日当たり2,000トン(年間73万トン-CO₂)、注入期間を50年(総注入量3,650万トン-CO₂)、帯水層の間隙率を20%、CO₂の密度を500 kg/m³、反応系の温度を50°C、反応系内におけるCO₂と地層水の容積比を1:2とした場合には、例

例えば玄武岩質帯水層で、注入開始から約 180 年で 3,650 万トンの CO₂ が全て鉱物化すると計算された。

本研究によるシミュレーションの結果は、従来考えられていたよりもはるかに速い反応速度 ($\sim 10^2$ 年の時間スケール) で CO₂ の鉱物化が進行する可能性があることを示す。また、CO₂ の鉱物化に伴う貯留安全性の向上が、超長期 (10³ 年～) のみならず短・中期的 ($\sim 10^2$ 年) な時間スケールでも期待され、鉱物トラッピングの進行度が貯留候補地の選定に向けて重要な指標となることが示された。本研究結果から、玄武岩層に加え、安山岩質の凝灰質砂岩層および凝灰岩層が国内における有力な CO₂ 貯留候補地となることが判明した。

申請者は、貯留層内における CO₂-水-岩石反応を再現するために、先行研究の実験手法を詳細に検討し多くの改善・工夫を施すことにより、半開放系の実験システムを独自に構築した。この新規の実験システムにより、CO₂ 鉱物トラッピングのメカニズムを詳細に把握することに成功した。審査委員会では、実験システムの新規性と詳細なメカニズムの解析が高く評価された。さらに、注入した CO₂ が超臨界状態で長期にわたって存在した場合の鉱物トラッピングの有効性、玄武岩を粉砕して粒度を調整した岩石試料を用いた実験と実地での CO₂ 貯留との整合性、地層の浸透率と CO₂ 注入速度の問題、エネルギー収支から見た際の CO₂ 地層処分の有効性等、多岐にわたった質疑がなされたが、それに対して申請者は適切に応答した。また申請者は、自身を筆頭著者とする査読論文 3 報の他に、共著の査読論文 4 報、国際会議報告 (筆頭 4, 共著 3) など外部発表の実績が高く評価された。

よって本論文は博士 (工学) の学位請求論文として合格と認められる。