特集号「岩石-水相互作用から見る二酸化炭素地中貯留」

緒言

Special issue “Rock-water interaction as an important process in CO₂ geological storage” Preface

奥山 康子 (Yasuko OKUYAMA)*

Carbon dioxide capture and storage (CCS) in deep geological formations has recently emerged as an important option for reducing atmospheric greenhouse gas. CO₂ injected into deep underground is considered to be dissolved in formation water filling the reservoir formation and to reduce water pH by dissociation. The acidified water is expected to react with minerals forming the reservoir rocks to promote their dissolution and alteration toward a final goal of the precipitation of new phases that are stable in the presence of a large amount of CO₂. A series of rock-water interaction summarized above is called “geochemical CO₂ trapping” that is expected to stabilize CO₂ geological storage system in a long period. This and the next issues of the Japanese Magazine of Mineralogical and Petrological Sciences collect papers concerning to the rock-water interaction associated with CO₂ geological storage. The storage options as a background of individual study are largely similar to those reviewed in IPCC (2005), however, a unique option matching with geology of the Japanese Islands as a young volcanic arc is also included.

Keywords: CO₂ geological storage, CCS, Rock-water interaction, Formation water, Geochemical trapping, Greenhouse gas

I. はじめに一なぜ CO₂ 地中貯留？

産業革命以降、石炭(そして後に石油)という化石燃料をエネルギー源としたことで大気中の CO₂ 濃度が飛躍的に上昇し、現在までの CO₂ 濃度の増加は南極氷床のボーリングから明らかになった過去 65 万年間の変動幅を超えるレベルにある (Jansen *et al.*, 2007)。増加した CO₂ は、温暖化に代表される地球規模の環境問題の原因物質と考えられ、世界各国は京都議定書をはじめとするさまざまな国際的枠組みの下に、CO₂ 放出量を抑える取り組みや技術開発を行っている。その 1 つに、「二酸化炭素分離・回収と貯留」(Carbon dioxide Capture and Storage, CCS)という技術の開発がある。これは、発電所など大量の CO₂ を排出する排出源に対して、排ガスから CO₂ を分離し、貯留に適した場所に輸送の上、大気から隔離して環境の悪化を防止するために十分な長期間貯留するという技術体系のことである (Fig. 1)。CO₂ 対策としてはバイオマス転換などによる固定や、再生可能エネルギーの利用、さらには炭素

をエネルギーとしない広範なエネルギー技術の変革が望まれるところだが(神本ら, 2008)、いずれも実現には時間を要し課題も多いと見込まれている。すなわち、技術開発や実適用そのものに時間を要することに加え、再生可能エネルギーを効果的に利用するための社会構造変革という別の課題が仄見えるということである。これに対して CCS は、即効性の期待できる対策であることが利点である。CCS は、本格的な低炭素エネルギー社会の確立に至るまでのつなぎの技術 (bridging technology) と位置づけられ、化石燃料の恒久的利用を目指すものというわけではない。CCS は、国連気候変動に関する政府間パネル (Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC) が 2005 年に特別報告書 (IPCC, 2005) を公表して、一挙に注目され、現在に至っている (Benson and Cole, 2008)。

CCS の「貯留 S」については、大きくは深い海に貯留する海洋貯留と地下深部に貯留する地中貯留の 2 つの方策があり、日本は周りを海に囲まれている地理的特性から、長年にわたって海洋貯留を重視した CCS 技術開発を行っ

doi: 10.2465/gkk.38.81

(平成 21 年 1 月 30 日受付, 平成 21 年 6 月 15 日受理)

* (株)産業技術総合研究所地圏資源環境研究部門, 〒305-8567 茨城県つくば市東 1-1-1 中央第 7

* Institute for Geo-Resources and Environment, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba Central 7, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan E-mail: okuyama-gsj@aist.go.jp

Fig. 1. Schematic diagram showing possible CCS system.

てきた。これは、海洋深層水に CO_2 を溶解させる、あるいは人工的に CO_2 ハイドレート層を海底に作り出して大気から隔離する方法である (Caldeira *et al.*, 2005)。ところが世界的にみると、海洋貯留の前には国際的条約である「海洋法」という大きな壁が存在していた。海洋法のロンドン条約議定書では、海洋汚染防止の立場から、海中への廃棄物の投棄は厳しく戒められており、海洋深層への CO_2 貯留は廃棄物の投棄とみなされる可能性が高かったのである。議定書は 2006 年に発効し、ここにいたって海洋貯留実現に高いハードルが置かれた状態となった。このような事情を背景に、現在日本でももう一つの選択肢、すなわち地中貯留の可能性を真剣に検討せざるを得ない状況となっている (薛・中尾, 2008)。この状況変化によって、海洋貯留を検討していた期間にはほとんど CO_2 対策に縁のなかった固体地球の研究者が、この問題に関与する必要が生じてきた。

CO_2 地中貯留では、分離・回収された CO_2 を地下の岩層に注入し、貯留する。貯留される CO_2 は、通常、地下の状態に適合した超臨界状態 (31.1°C および 7.38 MPa 以上: 日本化学会, 2003) にて圧入される。 CO_2 は水溶性の気体であるため、貯留においては地下の岩層を満たした深

部塩水地下水(あるいは地層水)に溶解し、それを著しく酸性に傾けると考えられる。地熱変質帯に見られるように、珪酸塩から構成される岩石は酸性流体によって変質されることが多い(例えば磯辺, 2008; 藤本ら, 2008)。したがって CO_2 地中貯留においても、 CO_2 およびそれを溶解した深部地下水と地下の岩石の間に化学的な相互作用(すなわち、岩石-水相互作用)がおきて、化学的变化をきたすことが予想される。圧入した CO_2 の溶解や岩層との反応、そして安定な新鉱物の形成は、 CO_2 地中貯留における「地化学的閉じ込め (geochemical CO_2 trapping; Gunter *et al.*, 2004)」と呼ばれるが、その科学的具体像には未解明の部分が数多く存在する。地化学のプロセスは、長期のうちには CO_2 地中貯留システムを安定化させる可能性が高く貯留の安定化に向けた発動が期待されるものである (IPCC, 2005)。 CO_2 地中貯留の長期安全性と確実性を明らかにして安全性評価につなげるためにも、未解明の事柄について研究を行う必要がある。

雑誌「岩石鉱物科学」の月号および次号は、 CO_2 地中貯留の地化学プロセス研究に関わる論文で構成するテーマ号である。これら論文は、これまでの地球惑星科学連合大会や、日本鉱物科学会 2008 年年会で開催されたスペシャ

ルセッション「岩石-水相互作用」あるいはそのほかの国内学会での研究発表を土台としている。

II. CO₂ 地中貯留の方法

個々の地化学的・鉱物科学的研究に先立って、現在実現に向けて検討されている CO₂ 地中貯留技術を概観したい (Fig. 2)。CO₂ 地中貯留は、CO₂ を使った石油の増進回収法から着想された。油層圧が低下した油田や天然ガス田では、水などを圧入して生産性を回復させる増進回収法 (enhanced oil/gas recovery, EOR/EGR) がしばしば試みられるが、ここで圧入流体として CO₂ を用いるのが CO₂-EOR (あるいは CO₂-EGR) である。この方法は、稼行年数の長い北米大陸の油田でしばしば行われている。最も有名なものが、カナダ、サスカチュワン州 Weyburn-Midale 地区で、石油生産向上を目的に 2000 年以来毎年 100 万トン以上の CO₂ が地下油層に圧入された (Petroleum Technology Research Centre, 2009; Wilson *et al.*, 2004)。CO₂-EOR に似た方法が、枯渇して生産活動が行われなくなった油ガス田に CO₂ を貯留する方法である。この方法は、石油・天然ガス鉱床を成立させた地質構造を CO₂ の閉じ込めに利用すると見ることもできる。地質構造を利用したこのようなガス貯留は、CO₂ 地中貯留以前から可燃性天然ガスを貯蔵する天然ガスタンクとして実際に試みられている (たとえば、オーストラリア、Otway ガス田の Iona 地区: Watson *et al.*, 2003; ドイツ、ケッツィン: 地球環境産業技術研究機構, 2008)。

これらの方法が、背斜構造など流体トラップ構造がすでに存在する場所を CO₂ 貯留の対象とする (「構造性帯水層貯留」と称する) のに対して、この種の地質構造が特段見当たらない単純な砂泥互層を利用するのが、「深部塩水帯水層貯留」 (deep saline aquifer storage) である。これは、「非構造性帯水層貯留」あるいは「一般帯水層貯留」とも呼ばれる。天然では、明瞭な流体トラップ構造がない砂泥互層中に、しばしば「水溶性天然ガス」というメタン鉱床が胚胎している。代表的なものが南関東ガス田 (佐脇ら, 2009; 三田ら, 2003; 福田ら, 1988) あるいは、宮崎ガス田 (相原・首藤, 1992) である。水溶性天然ガスの存在が、非構造性帯水層への CO₂ 地中貯留という着想につながっている (Koide *et al.*, 1992)。

以上の 3 手法が石油・天然ガス鉱床に関係した碎屑岩層を CO₂ 貯留の場にするのに対し、次の 2 手法は化学的に碎屑岩と著しく異なる岩層を貯留の場とする (Fig. 2)。その 1 つは炭層固定で、地下深部にある経済的な採掘が困難な石炭層に CO₂ を圧入し、石炭に吸着、固定する方法である。石炭層は石炭化の過程で生成する大量のメタンを内包するため、CO₂ 圧入に伴ってそれが遊離し、別途回収することが可能になる。このため CO₂ の炭層固定は、通常、炭層メタンの増進回収 (enhanced coal-bed methane recovery, ECBM) を兼ねている。また、岩石と CO₂ の間の化学反応を積極的に利用して、CO₂ を貯留・固定する「CO₂ の鉱物化固定 (mineral carbonation: IPCC, 2005)」も検討されている。鉄やマグネシウムに富む超苦鉄質ないし

Fig. 2. Various methods of geological CO₂ storage. CO₂ source, capture facility, and transportation are omitted.

は苦鉄質の岩石と、CO₂の間の反応により、炭酸塩鉱物が生成する可能性があり、これによるCO₂の固定を期待するわけである(Oelker *et al.*, 2008)。

IPCC 特別報告書にレビューされた以上の手法に加えて、火山国である日本の地質特性を生かしてCO₂固定を行うことも検討されている。日本に数多く見られる地熱地帯の地下にある高温の火成岩体に、CO₂を圧入し、その場の高温を利用して積極的に岩石と反応させ、炭酸塩鉱物を作って固定しようとする「ジオリアクター」と呼ばれる試みである(Tsuchiya *et al.*, 2003; Ueda *et al.*, 2005)。

ジオリアクターを含む各手法のうち、CO₂-EOR と枯渇油・ガス田貯留は、すでに存在する地下構造や地上の生産設備を転用できることから、最も早くから取り組まれている。しかし、CO₂貯留に利用可能な地下構造は世界的に見ても局在し、また、CO₂排出源の至近に存在しないことも多い。この「排出源と貯留地の適合化(source-reservoir matching)のために、CO₂排出源に近いところに分布する構造の単純な地層を対象とする深部塩水帯水層貯留が、地中貯留先進国のヨーロッパでも近年真剣に検討されるようになってきている。日本でもCO₂地中貯留の可能性を模索する貯留賦存量調査が、経済産業省所轄の「二酸化炭素地中貯留技術研究開発」の一環として行われ、構造性帯水層に対して300億トン、非構造性の深部塩水帯水層に対して1160億トンの貯留が可能と試算されている(Nakanishi *et al.*, 2009; 地球環境産業技術研究機構, 2005)。

III. 世界と日本でのCO₂地中貯留プロジェクト

これまで世界各地で行われた、あるいは現在進行中のCO₂地中貯留プロジェクトを、Figure 3にまとめる。世界で初めて実用規模のCO₂地中貯留が行われたのは、北海油田ノルウェー鉱区のSleipner 海域である。ここでは、1996年以来、採掘された天然ガスから分離したCO₂を年100万トン規模で、ガス生産層の上位にあるUtsira 砂岩層に圧入している(地球環境産業技術研究機構, 2008; Zweigel *et al.*, 2004)。このフィールドは、地下のCO₂の貯留状況が反射法探査で時を追って追跡されてきたということでもよく知られている(Arts *et al.*, 2004)。同様に、現在進行中の大規模CO₂-EORの代表例が、先に述べたカナダ、Weyburn-Midale 地区である。Sleipner での貯留CO₂が天然ガスから分離された天然物であるのに対して、ここではアメリカ合衆国北部の工業地帯で排出されたCO₂をパイプライン輸送し、地下に圧入している。これは、国境を越えた廃棄物移送という一面からも注目されている。

日本でも、これら世界的事例よりも小規模ながら、CO₂地中貯留実証試験が行われている。二酸化炭素地中貯留技術研究開発として新潟県長岡市で行われた実証試験では、2003年7月から18ヶ月間に、天然ガス生産基地地下約1000mの地層に約1万トンのCO₂を圧入し、地下挙動を研究した(Mito *et al.*, 2008; 薛・松岡, 2008; Xue *et al.*, 2006)。この試験は、世界初の陸上帯水層へのCO₂貯留実験として注目された。炭層固定およびECBM試験としては、北海道、夕張市南部地区にて小規模な実証試験が行われ(名子ら, 2005; 鈴木ら, 2007)、関連する基礎研究も進

Fig. 3. Geological CO₂ storage projects in the world. See CO₂ geological storage database (Research Institute for Innovative Technologies for the Earth, 2008) for the detail of the individual project.

められている(例えば島田ら, 2005)。さらに超苦鉄質岩に対する鉱物固定に関しては, 蛇紋岩地域を対象とした可能性調査(水落ら, 2004)に加え, 北海道岩内岳地域にて小規模な実地試験が行われている(二ノ宮ら, 2007)。

IV. CO₂ 地中貯留の岩石-水相互作用

CO₂ は大変に水に溶けやすく, 常圧下での溶解度は 0 °C で 1.71 (体積比), 20 °C でもその半分ほどの 0.88 (同) である(国立天文台, 2007)。このため地下に CO₂ を貯留すると, それは岩層の空隙を満たした深部塩水地下水(あるいは地層水)に急速に溶解すると考えられる。溶解によって CO₂ の流動性は, 停滞性の深部地下水と等しい程度になり, 圧入時の超臨界状態よりも移動性が低下する。この効果を CO₂ の溶解トラップ(solubility trapping)と呼ぶ(Fig. 4)。水に溶解した CO₂ は, 順次, 重炭酸イオン(HCO₃⁻)そして炭酸イオン(CO₃²⁻)に解離し, 深部地下水を著しく酸性化させる。酸性化した深部地下水は, 貯留層岩石中の鉱物(珪酸塩からなる碎屑粒子や炭酸塩などからなるセメント)と反応し, それらを変質あるいは溶解し

て, 深部地下水側に各種の金属イオンを供給する。CO₂ の解離からここまでに至るプロセスを, 特にイオン化トラップ(ionic trapping)と称することもある。地化学的性質の変化した深部地下水からは, 多量の CO₂ (および関連する化学種)の存在下で安定な新たな鉱物が沈殿する可能性がある。この条件で安定な鉱物は炭酸塩鉱物である可能性が高く, 安定相の生成は圧入した CO₂ を岩層に固定することを意味する。このプロセスを「鉱物固定(mineral trapping)」と呼ぶ(Fig. 4)。CO₂ 地中貯留における地化学的閉じ込め(geochemical CO₂ trapping)とは, 以上のプロセスの総称であり, 長期(1000 年以上)のうちには CO₂ 地中貯留システムを安定化させると期待される(IPCC, 2005)。

このような地化学的变化は, 貯留の地質学的モデルを立てた上で地化学シミュレーションにより具体的に追跡することができる。Figures 5 と 6 に, 上位に泥岩シール層を置く厚い砂岩貯留層への CO₂ 圧入モデルによる地化学シミュレーションによって得られた, CO₂ およびいくつかの溶存化学種の分布を示す。このシミュレーションでは,

Fig. 4. Schematic illustration showing geochemical interaction in the CO₂ reservoir (after Okuyama *et al.*, 2008).

Fig. 5. Calculated distributions of supercritical CO₂ (a) dissolved CO₂ (b) and HCO₃⁻ ionic complex (c) associated with the injection of CO₂ in a two-layer model system. See Todaka *et al.* (2009) for the detailed conditions of the simulation and for the distribution of other species and minerals. The red and thick blue colors in the figure show the highest and the lowest concentrations of individual species. The maximum and the minimum concentration (or fraction) of each species are as follows; (a) red=0.54, thick blue=0.02, with complete saturation at 1.0, (b) red=0.054, thick blue=0.002, with complete saturation at 1.0, (c) red=0.12 mol/kg, thick blue=0.03 mol/kg.

TOUGHREACT シミュレータ (Xu and Pruess, 2001; Xu *et al.*, 2006) を用い、東京湾岸地域の地下 1000 m 内外に分布する上総層群の砂泥互層を貯留対象に仮定して、圧入期間 50 年と圧入終了後 1000 年にわたる流体流動と地化学変化を計算した (詳細は本号の戸高らによる論説を参照されたい)。圧入された超臨界 CO₂ は、周囲の深部地下水 (密度およそ 1.0) よりも臨界点にて半分程度の低密度 (0.466: 日本化学会, 2003) であるために、密度差を駆動力として貯留層内を上昇・移動し、長期にはきのこ状のプルームを形成する (Fig. 5a)。CO₂ は圧入直後から分子状 CO₂ として盛んに溶解し (Fig. 5b)、このために圧入から数 100 年経過後には、CO₂ プルームの下部では超臨界 CO₂ の飽和度 (岩石空隙に占める超臨界 CO₂ の体積比) が低下していく (Fig. 5a)。溶解した CO₂ は比較的短時間のうちにまず重炭酸イオン (HCO₃⁻) に解離する (Fig. 5c)。CO₂ プルーム内での HCO₃⁻ 濃度は、その影響を受けないバックグラウンドの地層水の約 3–4 倍高い。HCO₃⁻ 濃度の高い領域は、pH の低い領域 (戸高ら, 2009, の Fig. 5 参照) とほぼ重なっており、HCO₃⁻ への解離とそれに伴う水素イオンの生成が貯留流体の酸性化の主たる要因であることが分かる。CO₂ 関連のもうひとつの化学種 CO₃²⁻ は、HCO₃⁻ の更なる解離で導かれるが、天然の深部地下水でも HCO₃⁻ に比し数桁低い存在度であり (奥山ら, 2008)、地化学シミュレーションにおいても 1000 年程度の期間に顕著な変化は認めがたかった。したがって CO₂ 地中貯留

Fig. 6. Calculated distributions of Ca²⁺ (a), dissolved SiO₂ (b) and porosity (c) associated with the injection of CO₂ in a two-layer model system. See Todaka *et al.* (2009) for the detailed conditions of the simulation and for the distribution of other species and minerals. The red and thick blue colors in the figure show the highest and the lowest, respectively, on the concentrations of individual species and porosity. The maximum and the minimum concentrations are as follows; (a) red=0.050 mol/kg, thick blue=0.006 mol/kg, (b) red=0.026 mol/kg, thick blue=0.002 mol/kg, (c) red=4% decrease, thick blue=4% increase of porosity to the initial value shown in yellow (20% porosity).

における鉱物固定では、圧入 CO₂ から導かれる HCO₃⁻ が重要と考えられる。

酸性化した貯留層内流体は、次いで貯留層岩石と反応してその構成鉱物を溶解させ、流体中に各種溶存種を放出させていく。珪酸塩鉱物の主要成分元素であると同時に、代表的溶存種でもある Ca²⁺ と SiO₂ について、計算で得られた分布を Figure 6 に示す。Ca²⁺ は天然の深部地下水でも 10¹–10² mg/l 程度と比較的多量に存在するが (奥山ら, 2008)、地化学シミュレーションでは CO₂ 圧入直後のプルーム内部にてさらに高濃度となり、プルームの動きに従って高濃度の領域が拡大していく (Fig. 6a)。一方 SiO₂ は、天然の深部地下水では 10¹ mg/l 程度の存在度であり (奥山ら, 2008)、CO₂ プルーム内でも当初は目だった変化がない。しかし圧入終了後非常に長期間経過後には、明確な増加が認められ、最大でバックグラウンドの 10 倍程度の高濃度となる (Fig. 6c)。Ca²⁺ がプルーム全体ではほぼ均一的に増加するのに対して、SiO₂ はプルーム基部にて高濃度である。貯留層内深部地下水の化学組成変化は貯留層岩石の溶解・変質および鉱物沈殿に起因すると考えられるが、この考え方と調和するように岩石空隙率も、CO₂ プルームの動きに従って変化する計算結果が得られた (Fig. 6c)。以上の変化は、CO₂ の層内流動やそれに伴う貯留層岩石構成鉱物の溶解および、新鉱物の選択的な沈殿などの動的効果を反映するものである (動的効果の詳細、とくに新鉱物の沈殿については、戸高ら, 2009 を参照されたい)。これは CO₂ 貯留層内での各種地化学的プロセスの検討にあたって、動的過程を追跡する反応輸送論 (reactive-transport modeling) が重要であることを明確に示す。しかし、反応輸送論の検討に当たって不可欠な各種の反応速度論的パラメータは、必ずしも十分に整っているわけではない (例えば徂徠, 2008 を参照)。よってここに、基礎的な鉱物科学的研究が求められることになる。

V. 本テーマ号の構成と趣旨

「岩石鉱物科学」の本号および次号は、日本鉱物科学会会員のかかわる CO₂ 地中貯留の地化学プロセス研究についての論文で構成する。現在日本では、石油鉱床や水溶性天然ガス鉱床の成立の場に似た堆積岩層への CO₂ 貯留、すなわち帯水層貯留が、最重点の検討対象となっている。帯水層貯留層での岩石-水相互作用を取り上げた論文のうち戸高ら論文では、堆積岩層に CO₂ を貯留した場合にいかなる地球化学的・鉱物学的変化が予想されるか、反応輸送論によって検討し、貯留層砂岩中の斜長石粒子の溶解が最終的な CO₂ の鉱物固定に重要であると結論している。徂徠ら論文では、CO₂ 貯留層条件下での灰長石単結晶の溶解速度を位相シフト干渉計を用いて観察・計測し、溶解速度を支配する溶解メカニズムを明らかにしたうえで、CO₂ 鉱物固定に対する時間的効果を論じている。同様に次号掲載予定の中田論文も、分圧をコントロールして

CO₂を溶解させた水によるCa斜長石粒子の溶解を、全岩スケールと鉱物スケールの実験研究によって検討している。

通常の堆積岩へのCO₂貯留での岩石-水相互作用は、地球科学的にはきわめて低温といえる数10℃程度の条件下で進行するもので、実験的再現が難しい部分がある。このため、地化学的類似性を持つと考えられる天然現象を研究するというアプローチ、すなわちナチュラル・アナログ研究がしばしば採用されている。CO₂地中貯留テーマ号の次回発行号では2編の論文を掲載の予定である。

日本の地質学的特性を生かした「ジオリアクター」によるCO₂固定は、本号の上田論文にてそのメカニズムを解説し、固定法としての有効性を論じる。実フィールドでの試験については次号に掲載の中田論文によって、また、原位試験の解析にむけた実験的研究は本号掲載の黒田ら論文にて、それぞれ紹介する。ジオリアクター以外の火成岩系を対象にした研究としては、鹿園ら論文による苦鉄質岩によるCO₂鉱物固定の地化学シミュレーションを、次号に取り上げる予定である。苦鉄質岩への鉱物固定は、わが国でもいわゆるグリーンタフ地域にて苦鉄質火山岩が深部石油・天然ガス貯留層となることが知られていることから(佐藤・津田, 1992), CO₂地中貯留の対象層を拡張するために将来は重要になる可能性がある。

これら研究はいずれも、各種のCO₂地中貯留法の岩石-水相互作用にかかわる比較的基礎的な研究である。わが国のCO₂地中貯留技術研究開発は、大規模実証試験とその先の実用化を目指して進行中であるが、CO₂地中貯留システムの安全性と安定性は、実施に対する社会的理解を得る上で重要な要素としてクローズアップされつつある。IPCC(2005)に見るように、地化学のプロセスは最終的にCO₂地中貯留システムを安定化させるために重要な役割を果たすと考えられている。しかし、このプロセスを動的に検討するための反応輸送シミュレータひとつをとっても、現状では反応速度論パラメータや溶解速度式のようなごく基礎的な事柄が十分把握されているわけではなく、解明すべき多くの課題が存在する。CO₂地中貯留の地化学のプロセスは、CO₂-深部地下水-岩石の三者の間の相互作用が本質的である。今回のテーマ号にて、地球温暖化対策の1つであるCO₂地中貯留という社会的課題の解決に、固体地球物質の研究者の力が求められていることをご理解いただければ幸いである。

謝 辞 本論で示した地化学シミュレーションは、平成19年度に財地球環境産業技術研究機構からの受託研究として行った「高精度地中挙動予測手法の研究」の成果の一部である。研究実施に当たってご支援いただいた財地球環境産業技術研究機構関係各位に、感謝したい。本テーマ号実現にあたっては、企画段階から「岩石鉱物科学」編集委員会および赤坂正秀委員長のご理解とご協力を賜った。実務作業の上では、産総研の佐藤久代さんおよび池田

さおりさんの手を煩わせた。本テーマ号収録の論文については、日本鉱物科学会内外の多数の方々に原稿査読へのご協力を仰いだ。匿名希望の方もおられるためにご芳名の紹介は避けさせていただくが、ここにご協力の事実を記述して感謝の意を表したい。

引用文献

- 相原安津夫, 首藤次男(1992): 第7章地下資源—天然ガス. 日本の地質9九州地方(唐木田芳文, 早坂祥三, 長谷義隆編), 296-297, 共立出版, 東京.
- Arts, R., Eiken, O., Chadwick, A., Zweigel, P., van der Meer, B. and Kirby, G. (2004): Seismic monitoring at the Sleipner underground CO₂ storage site (North Sea). In Geological Storage of Carbon Dioxide (Baines, S.J. and Worden, R.H., Eds.). *Geolo. Soc. Spec. Publ.*, **233**, 181-191.
- Benson, S.M. and Cole, D. (2008): CO₂ sequestration in deep sedimentary formations. *Elements*, **4**, 325-331.
- Caldeira, K., Akai, M., Brewer, P., Chen, B., Huagan, P., Iwama, T., Johnston, P., Kheshgi, H., Li, Q., Ohsumi, T., Poertner, H., Sabine, C., Shirayama, Y., Thomson, J., Barry, J. and Hansen, L. (2005): Ocean storage. In Special report on carbon dioxide capture and storage (Metz, B., Davidson, O., Coninck, H., Loos, M. and Meyer, L., Eds.). Cambridge University Press, Cambridge, U.K. and New York, N.Y., U.S.A., 278-319.
- 地球環境産業技術研究機構(2005): 全国賦存量調査. 二酸化炭素地中貯留研究開発平成17年度報告書, 地球環境産業技術研究機構, 1104-1525.
- 地球環境産業技術研究機構(2008): 二酸化炭素地中貯留データベース. <http://cgsdb.rite.jp/project/detail.php?pid=31>. (2009年5月3日引用)
- 藤本光一郎, 乙幡 直, 松村昌紀(2008): 箱根火山周辺に掘削された深部坑井の熱水変質について. 日本鉱物科学会2008年年会講演要旨集, S2-12.
- 福田 理, 永田松三, 鈴木宏芳(1988): 関東平野の地下地質と地層流体. 地質学論集, **31**, 5-40.
- Gunter, W.D., Bachu, S. and Benson, S. (2004): The role of hydrogeological and geochemical trapping in sedimentary basins for secure geological storage of carbon dioxide. In Geological Storage of Carbon Dioxide (Baines, S.J. and Worden, R.H., Eds.). *Geolo. Soc. Spec. Publ.*, **33**, 129-146.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (2005): Special report on carbon dioxide capture and storage. Contribution of Working Group III of the Intergovernmental Panel on Climate Change (Metz, B., Davidson, O., Coninck, H., Loos, M. and Meyer, L., Eds.). pp. 431, Cambridge University Press, Cambridge, U.K. and New York, U.S.A.
- 磯部博志(2008): 強酸性熱水変質生成物の成層構造と熱水流体変動. 日本鉱物科学会2008年年会講演要旨集, S2-08.
- Jansen, E., Overpeck, J., Briffa, K.R., Duplessé, J.-C., Joos, F., Masson-Delmotte, V., Olago, D., Otto-Bliesner, B., Peltier, W.R., Rahmstorf, S., Ramesh, R., Raynaud, D., Solomia, O., Villalba, R. and Zhang, D. (2007): Paleoclimate. In Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K.B., Tignor, M. and Miller, H.L., Eds.). 434-497, Cambridge University Press, Cambridge, U.K. and New York, U.S.A.
- 神本正行, 鈴木昌弘, 佐野泰三(2008): 地球温暖化-緩和技術と

- その評価. 産総研 Today, **28**, 2.
- Koide, H., Tazaki, Y., Noguchi, Y., Nakayama, S., Iijima, M., Ito, K. and Shindo, Y. (1992): Subterranean contaminant and long-term storage of carbon dioxide in unused aquifers and in depleted natural gas reservoirs. *Ener. Convers. Manag.*, **33**, 619–626.
- 国立天文台(2007): 理科年表(平成 19 年版). pp. 1030, 丸善, 東京.
- 三田 勲, 和気史典, 国末彰司(2003): 九十九里地域におけるガス水比およびヨウ素濃度を規制する要因—特に, 海底扇状地堆積物および断層が果たす役割について—. 石油技協誌, **68**, 111–123.
- Mito, S., Xue, Z. and Ohsumi, T. (2008): Case study of geochemical reactions at the Nagaoka CO₂ injection site, Japan. *Intern. J. Greenhouse Gas Contr.*, **2**, 309–318.
- 水落幸広, 二ノ宮淳, 加藤孝幸, 矢島達哉(2004): 蛇紋岩地域における炭酸塩沈殿現象—蛇紋岩体への CO₂ 固定にむけてのナチュララアナログ研究—. 資源・素材 2004(東京), F-8, 企 100–103.
- Nakanishi, S., Mizuno, Y., Okumura, T., Miida, H., Shidahara, T. and Hiramatsu, S. (2009): Methodology of CO₂ Aquifer Storage Capacity Assessment in Japan and Overview of the Project. *Proc. 9th Intern. Conf. on Greenhouse Gas Control Techn., Energy Procedia*, **1**, 2693–2700.
- 名子雅夫, 小牧博信, 藤岡昌司(2005): 二酸化炭素炭層固定化技術開発予備実験の現状と課題について. 資源・素材 2005(室蘭), B1-2, 133–136.
- 二ノ宮淳, 水落幸広, 加藤孝幸, 岡本征雄, 矢島達哉(2007): 蛇紋岩体の地化学環境を利用した CO₂ 固定研究. 粘土科学 **46**, 28–32.
- 日本化学会(2003): 化学便覧. I 基礎編(改定第 5 版), pp. 946, 丸善, 東京.
- Oelker, E.H., Gislason, S.R. and Matter, J. (2008): Mineral carbonation of CO₂. *Elements*, **4**, 333–337.
- 奥山康子, 佐々木宗建, 村岡洋文, 金子信行, 俎徠正夫(2008): CO₂ 帯水層貯留での「地層水」の役割とわが国での CO₂ 地化学トラッピングへの適用性. 地学雑誌, **117**, 768–781.
- Petroleum Technology Research Centre (2009): Weyburn-Midale CO₂ Project. http://www.ptrc.ca/weyburn_overview.php. (2009 年 5 月 3 日引用)
- 佐藤 修, 津田宗茂(1992): グリーンタフの探鉱. 天然ガス鉱業会・大陸棚石油開発協会編「改訂版 日本の石油・天然ガス」, 天然ガス鉱業会・大陸棚石油開発協会, 277–291.
- 佐脇貴幸, 金子信行, 猪狩俊一郎, 前川竜男, 徳橋秀一, 中嶋健, 棚橋 学, 坂田 将, 森田澄人(2009): 水溶性天然ガス資源(南関東ガス田)の研究—温泉開発, 深層熱水利用等の指針策定への貢献(アウトカム)—. 温泉科学, **58**, 302–309.
- 島田荘八(2005): コールベッドメタン増進回収におけるガス吸着・置換に関する考察. 資源・素材 2005(室蘭), B1-2, 141–142.
- 鈴木祐一郎, 猪狩俊一郎, 前川竜男, 小牧博信, 藤田眞仁(2007): CO₂ 炭層地中貯留における地化学モニタリングについて(続報). *GREEN Report 2007*, 産総研地圏資源環境研究部門, 67–68.
- 俎徠正夫(2008): CO₂ 地中貯留に関連した水-岩石相互作用の研究の現状と速度論的アプローチの展望. 地学雑誌, **117**, 782–796.
- 戸高法文, 奥山康子, 赤坂千寿, 佐々木宗建, 當舎利行(2009): 地化学・貯留層シミュレーションによる二酸化炭素の地化学トラッピングの検討: 東京湾岸モデル. 岩石鉱物科学, **38**, 90–100.
- Tsuchiya, N., Suto, Y. and Nakatsuka, K. (2003): Georeactor; Advanced geothermal energy utilization for material processing and hydrogen generation. *Geotherm. Resour. Coun. Trans.*, **27**, 111–114.
- Ueda, A., Kato, K., Ohsumi, T., Yajima, T., Ito, H., Kaieda, H., Metcalf, R. and Takase, H. (2005): Experimental studies of CO₂-rock interaction at elevated temperatures under hydrothermal conditions. *Geochem. Jour.*, **39**, 417–425.
- Watson, M.N., Zwingmann, M., Lemon, N.M. and Tingate, P.R. (2003): Onshore Otway Basin carbon dioxide accumulations: CO₂-induced diagenesis in natural analogues for underground storage of greenhouse gas. *Austral. Petrol. Prod. Explor. Assoc. J.*, **43**, 637–653.
- Wilson, M., Monea, M., Whittaker, S., White, D. and Chalatunyk, R. (2004): IEA GHG Weyburn CO₂ monitoring & storage project Summary report 2000–2004. pp. 274, IEA GHG R&D Programme, Gloucester, U.K.
- Xu, T. and Pruess, K. (2001): Modeling multiphase non-isothermal fluid flow and reactive geochemical transport in variably saturated fractured rocks: 1 Methodology. *Amer. J. Sci.*, **301**, 16–33.
- Xu, T., Sonnenthal, E., Spycher, N. and Pruess, K. (2006): TOUGHREACT: a simulation program for non-isothermal multiphase reactive geochemical transport in variably saturated geologic media. *Comput. Geosci.*, **32**, 145–165.
- 薛 自求, 松岡俊文(2008): 長岡プロジェクトからみた二酸化炭素地中貯留技術の現状と課題. 地学雑誌, **117**, 734–752.
- 薛 自求, 中尾信典(2008): CO₂ 地中貯留—世界各国の技術動向と政策動向および日本の課題—. 地学雑誌, **117**, 722–733.
- Xue, Z., Tanasa, D. and Watanabe, J. (2006): Estimation of CO₂ saturation from time-laps CO₂ well logging in an onshore aquifer, Nagaoka, Japan. *Explor. Geophys.*, **37**, 19–29.
- Z weigel, P., Arts, R., Lothe, A.E. and Lindeberg, E.R.G. (2004): Reservoir geology of the Utsira Formation at the first industrial-scale underground CO₂ storage site (Sleipner area, North Sea). In *Geological Storage of Carbon Dioxide* (Baines, S.J. and Worden, R.H., Eds.). *Geol. Soc. Spec. Publ.*, **233**, 165–180.