

修士論文概要書

Master's Thesis Summary

Date of submission: 01 / 15 / 2025

専攻名 (専門分野) Department	総合機械工学専攻	氏名 Name	高瀬 雄大	指導 教員 Advisor	中垣 隆雄 印 Seal
研究指導名 Research guidance	エクセルギー工学	学籍番号 Student ID number	CD 5223B056 - 5		
研究題目 Title	岩石と場の特性を活用した風化促進技術“A-ERW”の開発 ～CO ₂ 鉱物化のメカニズム解明に基づく予測モデルの構築～				

1. 緒言

2050年カーボンニュートラル実現のため、脱炭素困難部門で排出されたCO₂を相殺するネガティブエミッション技術が必要不可欠とされている。中でも自然環境下においてCO₂との反応ポテンシャルを有する岩石の微粉化により、CO₂との反応を人為的に加速させる技術である岩石風化促進は、自然現象の加速であり、必要な土地や水が少ないことから早期普及が期待されている。欧米では主に農耕地に岩石を散布し、CO₂を固定化する農業的岩石風化促進法の開発が進められているが、開放場への散布のためCO₂固定量を正確にモニタリングすることが困難であることが課題点として挙げられる。本研究室ではハウス型の施設に岩石を敷き詰め、大気と気固反応させる工業的岩石風化促進法を開発している。本技術において1年後のCO₂固定量を正確に予測するためには、CO₂鉱物化モデルの精度向上が必要不可欠である。そこで、本研究では、正確なCO₂鉱物化量の予測を目的とし、SEM分析を通じて実現象を把握し、実現象に即したCO₂鉱物化予測モデルの構築を目指した。

2. 粒子内拡散を仮定したCO₂鉱物化モデル

本研究室では鉄鋼スラグを用いたCO₂鉱物化に関する研究で気相CO₂が粒子表面で反応して形成された炭酸塩層内を拡散し、粒子内部にあるCa, Mgと反応する現象を仮定したCO₂鉱物化モデル^[1]が構築され、実験値を精度よく模擬することが確認されている。そこで、天然岩石についても鉄鋼スラグと同様のメカニズムでCO₂鉱物化が生じていると仮定し、本モデルの適用を検討した結果、実験値を大幅に過大評価した。実験値を過大評価した原因として、岩石にはCO₂と反応しうる鉱物が複数含まれており、鉱物によって反応速度が異なる可能性が考えられた。本モデルにおいて鉱物ごとの反応速度の違いを考慮した結果、加速試験の実験値を精度よく模擬した(図1)。しかし、本モデルにおいて大気条件下でのCO₂鉱物化量を予測した結果、実験値を大幅に過小評価した(図2)。

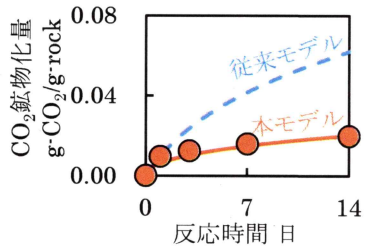


図1 加速試験とモデル計算の結果

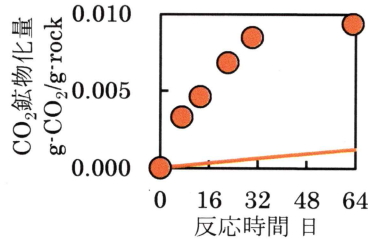


図2 大気試験とモデル計算の結果

3. 溶解・沈殿を仮定したCO₂鉱物化モデル

実験値との乖離が確認された2章のCO₂鉱物化モデルでは、粒子内の気相CO₂の拡散・鉱物化反応の仮定で挙動を予測していた。この仮定が実現象と乖離している可能性を考え、岩石粒子を研磨し、SEMで粒子断面を観察した。その結果、粒子表面では炭酸塩析出がみられたが、粒子内部では概して炭酸塩は確認されなかった(図3)。よって、CO₂は粒子内へ拡散せず、主に粒子表面でのみ反応が生じていると考えられる。既往研究^[2]より、相

対湿度に対し、CO₂鉱物化速度は正の相関が見られたことも踏まえると、粒子表面に凝縮した水に鉱物およびCO₂が溶解し、それらの会合で炭酸塩が析出していると考えられる。そこで、図4のような現象を仮定し、CO₂鉱物化予測モデルを式(1)~(5)で構築した。本モデルを用いて実験値の模擬を試みた結果、

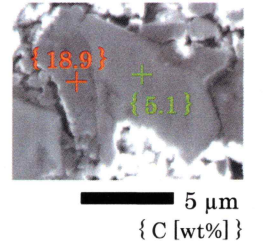


図3 CO₂鉱物化後の岩石

実験値を過大評価した。この原因について、炭酸塩以外にMagnesium Silicate Hydrate (M-S-H)が析出している可能性が考えられたことから、M-S-Hの析出速度定数をパラメータとして、再度実験値の模擬を試みた結果、実験値を精度よく模擬した。また

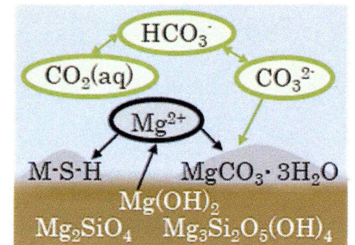


図4 溶解・沈殿モデル図

$$\frac{d[Mg^{2+}]}{dt} = \sum_m \left[kA \left(1 - \frac{[Mg^{2+}]^x [OH^-]^y}{K_{sp}} \right) \right]_m \quad (1)$$

$$m: \text{鉱物種} \quad - (k_1[CO_3^{2-}] + k'_{MSH})[Mg^{2+}]$$

$$\frac{d[CO_2(aq)]}{dt} = k_{CO_2} A' (S_{CO_2} - [CO_2(aq)]) - k_{1+}[CO_2(aq)][OH^-] + k_{1-}[HCO_3^-] \quad (2)$$

$$\frac{d[HCO_3^-]}{dt} = k_{1+}[CO_2(aq)][OH^-] - k_{1-}[HCO_3^-] - k_{2+}[HCO_3^-][OH^-] + k_{2-}[CO_3^{2-}] \quad (3)$$

$$\frac{d[CO_3^{2-}]}{dt} = k_{2+}[HCO_3^-][OH^-] - k_{2-}[CO_3^{2-}] \quad (4)$$

$$\frac{d[MgCO_3 \cdot 3H_2O]}{dt} = k_1[Mg^{2+}][CO_3^{2-}] \quad (5)$$

の析出量が少なく、炭酸塩の析出量が多くなるようなpHの摸索が必要とわかった。そこで、pHをパラメータとしてCO₂鉱物化挙動を予測し、炭酸塩の析出挙動をpHに対して調査した結果、大気条件下においてはpH=12で最も多く析出し、CO₂鉱物化に最も適した条件であることがわかった。逆に、鉱物の溶解はpHが低いほど速くなるため、pHの高・低を人為的にスイングさせ、鉱物の溶解、炭酸塩の析出をともに活性化させる方が有効であると考えられる。そこで、pHが上昇した水を蒸発させ、その後大気CO₂と平衡にあるpH≈5.6の水を噴霧して再度CO₂鉱物化の最適値pH=12までスイングさせるプロセスで予測したところ、単純加湿と比べて1年後のCO₂鉱物化量が4.9倍に増加することがわかった(図5)。

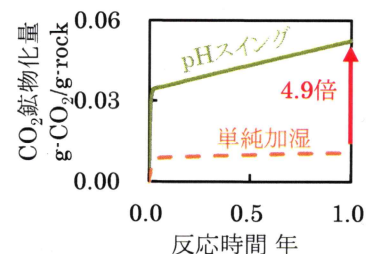


図5 pHスイングを仮定したCO₂鉱物化挙動

[1] 笹川純, 修士論文, 2021
[2] 高瀬雄大, 卒業論文, 2022