

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

奥山 康子* 佐々木 宗建* 村岡 洋文*
金子 信行* 徂 徠 正夫*

Role of “Formation Water” and Its Importance for Geochemical Trapping in an Open Aquifer CO₂ Storage

Yasuko OKUYAMA*, Munetake SASAKI*, Hirofumi MURAOKA*,
Nobuyuki KANEKO* and Masao SORAI*

Abstract

The geochemical characteristics of deep groundwater, or formation water, are essential in all processes of geochemical trapping in an open aquifer CO₂ storage. We have been constructing a database of groundwater chemical compositions in deep aquifers in Japan (“Formation-water database”). The database have two major objectives; (1) to be a dataset on groundwater of reservoir depths for evaluating CO₂ solubility; and, (2) providing model water compositions for geochemical modeling and experiments in our study of underground CO₂ storage. More than 2600 datasets are collected from literature on geochemistry of groundwater reported from 10 selected areas in Japan; the areas of investigation include populated cities in which large point sources of CO₂ are located. The accumulated data indicate that groundwater of reservoir depth (> 800 m) is generally dilute in composition compared to average seawater, suggesting a high potential of CO₂ solubility. Systematic geochemical differences are also observed between groundwater hosted in marine and freshwater sediments.

Key words : global warming, CO₂ sequestration, open aquifer storage, deep groundwater, formation-water database, geochemical trapping, geochemical modeling

キーワード : 地球温暖化, CO₂ 隔離, 一般帯水層貯留, 深部地下水, 地層水データベース, 地化学トラップ, 地化学モデリング

I. はじめに

年平均気温の上昇や, 異常気象の頻発で, 地球温暖化の影響が実感されるようになってきた。これをうけて, 大気中の二酸化炭素を削減する温暖化対策, なかでも「CO₂ 地中貯留」が, 即効性のある対策として注目されつつある (IPCC,

2005; Gale *et al.*, 2007)。

CO₂ 地中貯留には, 苦鉄質・超苦鉄質岩との化学反応による鉱物化貯留 (McGrail *et al.*, 2003) や, すでに実用化の域に達している CO₂-EOR (CO₂ 注入による石油の増進回収法; たとえば, Stevens *et al.*, 2001; Mortis, 2002) などいくつかの手段があるが, 現在重視されている

* 産業技術総合研究所地圏資源環境研究部門

* Institute for Geo-Resources and Environment, AIST

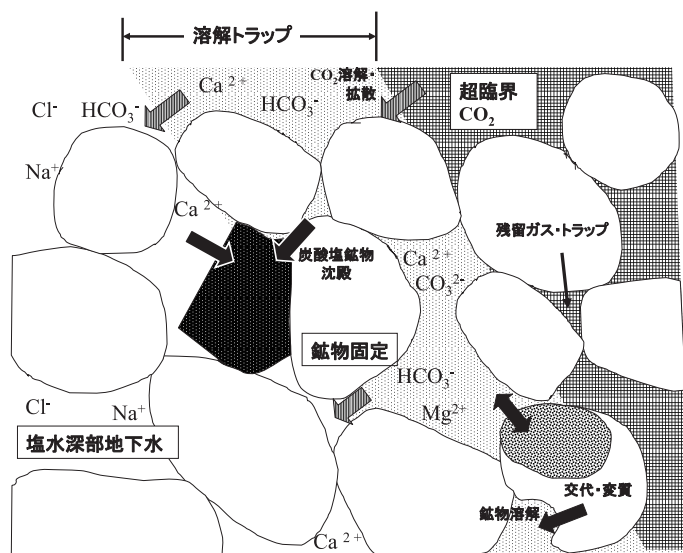


図 1 地下の CO₂ 貯留層での地化学的相互作用の概念.

Fig. 1 Conceptual model of geochemical interaction in an underground CO₂ reservoir.

方策は「一般帯水層貯留」、すなわちドーム構造など流体閉じこめに適した地質構造を持たず、水資源としては使えない水質の地下水で満たされた深い地層への CO₂ 地中貯留である (Benson and Cook, 2005)。国内のいわゆる大規模排出源 (IEA, 2002) の多くは沿岸部の平野に立地しているが、平野の地下には後期新生代の地質構造の比較的単純な堆積層が存在することが多い。このような場所で安全な地中貯留が可能であれば、CO₂ の輸送コストが低下し地中貯留の経済性が向上するであろう。地質構造の単純な堆積層で地質流体が保持されうるのは、「水溶性天然ガス鉱床」の実在により十分可能と考えられる (Koide *et al.*, 1992)。

産総研では、(財)地球環境産業技術研究機構の委託を受け、2005 年度から一般帯水層を対象とした CO₂ 地中貯留の研究を実施している。この研究は、日本有数の工業地帯である東京湾岸を CO₂ 地中貯留のモデル地域として、実在する帯水層での CO₂ 流体の挙動を予測し、一般帯水層での CO₂ 貯留実現の科学的根拠を得ることを目標にしている。この研究には、日本各地の貯留層

深度に存在する深部地下水の溶存成分データを CO₂ 地化学的隔離性能の観点から検討することを、課題のひとつとして含んでいる。本論ではその結果得られた貯留深度深部地下水の特徴を紹介し、CO₂ 隔離メカニズム解明に地化学が果たす役割と有効性を示したい。

II. 帯水層貯留での地化学的相互作用と深部地下水の重要性

現在考えられている CO₂ 地中貯留では、CO₂ を超臨界状態で貯留すると想定し、このため静水圧下で CO₂ 臨界圧力条件を満たす地下 800 m 以深に貯留層をおく必要がある。このような深部の地層は地下水で満たされ、通常それは塩分を含み利用に耐えない水質であることが多い。

CO₂ の臨界密度は 0.466 (31.1℃, 7.38 MPa) と、水の半分ほどである (日本化学会, 2003)。このため地下に多量に注入された超臨界 CO₂ は、プルームを形成して、その場を満たした深部地下水との密度差による浮力をドライビング・フォースとして貯留層内を流動しつつ、深部地下水に溶解していくと期待される (図 1)。CO₂ の純粋な

水に対する溶解度（体積比）は0℃で1.71、20℃ではその半分ほどの0.88で（国立天文台, 2007）、非常に水に溶けやすい性質ということができ、貯留層内を流動する過程で層内深部地下水への溶解が効果的に進むと考えられる。溶解後のCO₂の移動性は、貯留層での地下水流動に従うため、プリューム状CO₂に比べ格段に低下すると考えられる。深部地下水への溶解によるCO₂閉じ込めを、溶解トラップと称し（Benson and Cook, 2005）、CO₂を地下に閉じ込めるメカニズムとして重要である。

CO₂は深部地下水に溶解すると、重炭酸イオン（HCO₃⁻）や炭酸イオン（CO₃²⁻）に解離し、地下水を酸性に傾ける。これにより、貯留層岩石を構成する鉱物のうち酸性条件で不安定なものが溶解し始める。代表的な鉱物が、各種の炭酸塩である。若い地質時代の地層には、高い頻度で碎屑性炭酸塩（主として方解石）が認められる。これは破片状の貝化石のことであり、貝化石として形態がわかる場合も、他の砂岩構成粒子と差がないほどに碎屑粒化した場合もある。これら炭酸塩の溶解は、CO₂注入開始直後から進み、場合によっては岩層の浸透率など貯留特性に影響することもあると考えられる。

酸性化した深部地下水はさらに、貯留層堆積岩を構成する珪酸塩碎屑鉱物との反応を起こすと考えられる。その反応は、珪酸塩鉱物を加水し変質させると同時に、鉱物を構成する金属イオンを深部地下水側へ溶出するものであろう（図1）。注入CO₂に比べ周囲の地層岩石ははるかに大量に存在するので、岩石との反応が効果的に進行すれば、一度酸性に傾いた深部地下水が再び中性的な水素イオン濃度に引き戻される可能性もある。CO₂の解離から、堆積岩構成鉱物の変質と各種金属イオンの溶出までを、特にイオン・トラップと呼ぶことがある。

以上のプロセスで深部地下水が組成を変化させ、いずれかの鉱物の飽和溶解度に達すると、その鉱物の沈殿が起きると予想される。貯留層地下水はCO₂に飽和しているので、沈殿する新鉱物にはいずれ炭酸塩鉱物が含まれてくる可能性が

高い。新たな炭酸塩の生成によって、注入CO₂は鉱物として永久的に地下に固定されることになる。この最終過程を鉱物固定と呼ぶ（Benson and Cook, 2005）。鉱物固定においては、CO₂注入直後に溶解したものと別種の、高いCO₂分圧下で安定な炭酸塩（たとえば、ドーソン石、NaAl（CO₃）（OH）₂）が重要と考えられ、実際の貯留層での安定条件などを検討する必要がある。

以上のような地化学的プロセスにおいて、堆積岩貯留層を満たす深部地下水の特性が大変重要であることは明らかである。CO₂閉じ込めの最終段階である鉱物固定では、深部地下水はCO₂と貯留層堆積岩を構成する珪酸塩鉱物の間の反応を媒介する。水を介さずに珪酸塩鉱物とCO₂が直接反応するには、高温変成作用に該当する温度条件が必要で（たとえば、Bucher and Frey, 1994; Ellis and Hiroi, 1997）、地中貯留で想定される深度の地下温度、すなわち水の沸点に及ばない低温下ではおこりえない。一般帯水層貯留の温度条件で岩石中の鉱物を巻き込む反応が起きるためには、貯留層内深部地層水がCO₂を溶解して酸性化することが不可欠である。CO₂溶解度は、もうひとつの地化学的閉じ込めメカニズムである溶解トラップの性能そのものであり、それは深部地下水の水質に影響される可能性がある。

したがって、溶解トラップ性能を評価するためには、深部地下水のCO₂溶解度の見積りが必要である。そのためには、800 m以深の地下水の塩分濃度を調べ、地層水の地化学特性を明らかにする必要がある。われわれはCO₂地中貯留に利用可能な日本全国の一般的深部帯水層についての溶存成分のデータベースをもとに日本国内におけるCO₂地中貯留ポテンシャルの大まかな評価を試みた。

III. 地層水データベース

1) データベースと構築の方針

われわれは、国内主要地域の深部地下水組成をデータベース化し、地化学的特性を把握する研究を行ってきた。ここで構築するデータベースを、「地層水データベース」と呼ぶ。その直接の目的

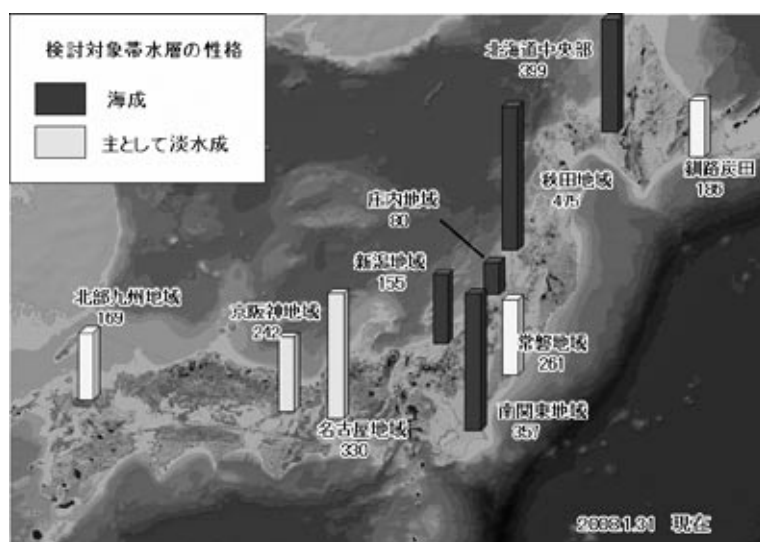


図 2 「地層水データベース」の構築における対象地域と地域別のデータ件数。

Fig. 2 Areas of investigation for constructing of "Formation-water database", with current numbers of data in each area.

は、以下の3点である；1) CO₂ 地中貯留に関わる流体流動シミュレーション研究や鉱物溶解実験など実験的研究に向けて、モデル（初期条件）となる水組成を導くこと、2) 地化学シミュレーションで求められる水組成に対する参照データとしての実組成を集約すること、および、3) 国内主要地域での深部地下水の溶解トラップ性能のあらましを実験データとの比較から把握すること。

「地層水データベース」では、後述する国内主要地域から報告された深部地下水に関する水質と付随するデータを集約している。水質データは溶存主成分組成に関するものであり、微量成分や同位体のデータは含んでいない。これは、データベース構築のひとつの目的が、岩石・鉱物との反応のモデリングであることによる。温度・深度など地下水研究で通常取り上げる情報のほか、地下水を胚胎する地層とその性状も可能な限り取り込むこととした。

データは大部分を公表文献から取得している。文献は、1960年から2006年までに発行されたものである（※個々のデータの出版は本論文の文献として列挙しない）。収録対象としてCO₂ 貯留

層深度である800 m以深の深井戸のデータが重要であるが、それより浅い井戸のデータも天水などによる希釈の影響を評価するために収録している。データ項目の充足の観点からは、いわゆる油田かん水に関する地球化学研究論文は、胚胎層の地質学までふくめた優れた情報を盛り込み、最も高品位なものである。しかしそれ以外でも、温泉分析値や用水の水質データには必要なデータ項目を満足するものが多数存在する。一方、稼行中の油・ガス田からの地層水データは個別的分析値として信頼度の高いものが多いが、稼働状況のモニタリングを目的にルーチン的に行われている分析ではデータ充足度の低いものが珍しくない。地層水データベースでは以上のデータすべてを収録しているが、地球化学的解析では質に応じた取り扱いを行っている。データを採取した文献は、データベースに項目をもうけて記録している。

2) データ収集の対象地域

深部地下水組成のデータベース化の対象地域は、図2に示す全国10地域である。対象地域には、東京湾岸を中心とした南関東、名古屋、大阪、北部九州という大都市、すなわち大規模排出

源の立地する地域を含む。東京湾岸を含む南関東地域は、産総研の地中貯留研究のモデル・フィールドでもある。図2の地域には、CO₂地中貯留技術研究開発での全国貯留貯存量調査（地球環境産業技術研究機構, 2007）の調査対象地域をも含んでいる。日本海側の3地域はわが国の油田地域であり、また釧路炭田地域と常磐地域はかつて多数の炭鉱が存在し、ともに比較的数据量が多いことから検討対象とした。

対象地域の層序と堆積環境を、図3にまとめる。柱状図上で地層名を斜字体で表記しているのは、深度800mを超える深井戸が到達している地層であることを表す。図3の左半分におく地域、すなわち北海道中央部・秋田・庄内・新潟・南関東の各地域では、深い地下水は海成層に胚胎している。これら地域を本研究では海成層地域として取り上げる。貯留層深度に存在する海成層は、南関東地域では後期鮮新世から更新世にかけての地層である上総層群であるが、他の4地域では中期中新世以降の新第三紀層である。一方図3の右半分の地域では、浅海成層をはさむ淡水成層が深部地下水胚胎の場となっている。図3の右半分に掲げる地域を、本研究では淡水成層地域と呼ぶ。大規模排出源立地地域である名古屋・京阪神両地域での深部地下水胚胎層は、主として淡水成の東海層群および大阪層群で、その年代は南関東地域の上総層群にはほぼ並ぶ。他の淡水成層3地域は、古第三紀層の分布地域である。

深部地層を満たす深部地層水の地化学的性質は、地層の埋没とともに地層岩層との相互作用を経て変化していくが、埋没時間の短い間は堆積の場にあった水の性質に大きく影響される（歌田, 1978）。新生代の地層に代表される若い堆積物では、地層を満たした水の性質は初期状態から大きく改変されていない可能性が高い。本研究で海成層・淡水成層の区別をもうけて研究対象地域を選定したのは、この理由による。集積したデータ数は地域差が大きい（図2）、総数では2,600件以上に達している。このうち深度800mより深い地下水データは1,200件ほどである。

IV. CO₂ 地中貯留の観点からのわが国での 深部地下水の特性

「地層水データベース」から明らかになった国内主要地域での深部地下水の地化学特性を、平均海水組成と比較して示す。平均海水は、基本的に北野（1995）を用い、AlとSiO₂は藤永ほか（2005）によった。

1) 水素イオン濃度と重炭酸濃度

水素イオン濃度（pH）は地化学モデリングにおける重要な要素であり、深部地下水においてもほぼもれなくデータが存在する項目である。図4のように、淡水成層地域の深部地下水の水素イオン濃度はpH = 8.0前後に、海成層地域のものはpH = 8.0よりやや値が小さい側に、それぞれまとまってプロットされる。両地域とも深部地下水の平均pHは平均海水の値（7.98）より低い。海成層地域の深部地下水の中では、南関東地域の第四紀層中のものに、海水程度のややpHの高いものが多い傾向が認められる。

深部地下水に低いpH値が現れる原因は、それらが海水に比べ重炭酸イオン（HCO₃⁻）を高濃度を含むことによると考えられる（図5）。海成層中の深部地下水のHCO₃⁻は、平均海水に比べ最大で10倍ほどに達する。淡水成層中の深部地下水は海成層地層水に比べほとんどすべての成分について希薄であるが、重炭酸については海水に匹敵する濃度である場合が珍しくない。

このように、深部地下水ではHCO₃⁻は塩素イオン（Cl⁻）に次いで高濃度の溶存陰イオンとなっている。海水でCl⁻に（19,000 mg/l）次いで多量に存在する陰イオンは硫酸イオン（SO₄²⁻：2,650 mg/l）であるが、深部地下水では地域別平均値として50 mg/lを超えることはまれである。SO₄²⁻に極端に乏しく、HCO₃⁻が卓越する点が、海水と深部地下水の地化学的な相違点といえることができる。

2) 塩素イオン濃度の層準規制

海成層地域の深部地下水に最も高濃度で存在する陰イオンは、海水同様にCl⁻である。淡水成層地域の深部地下水でも、多くの場合同じくCl⁻が最も多量である。

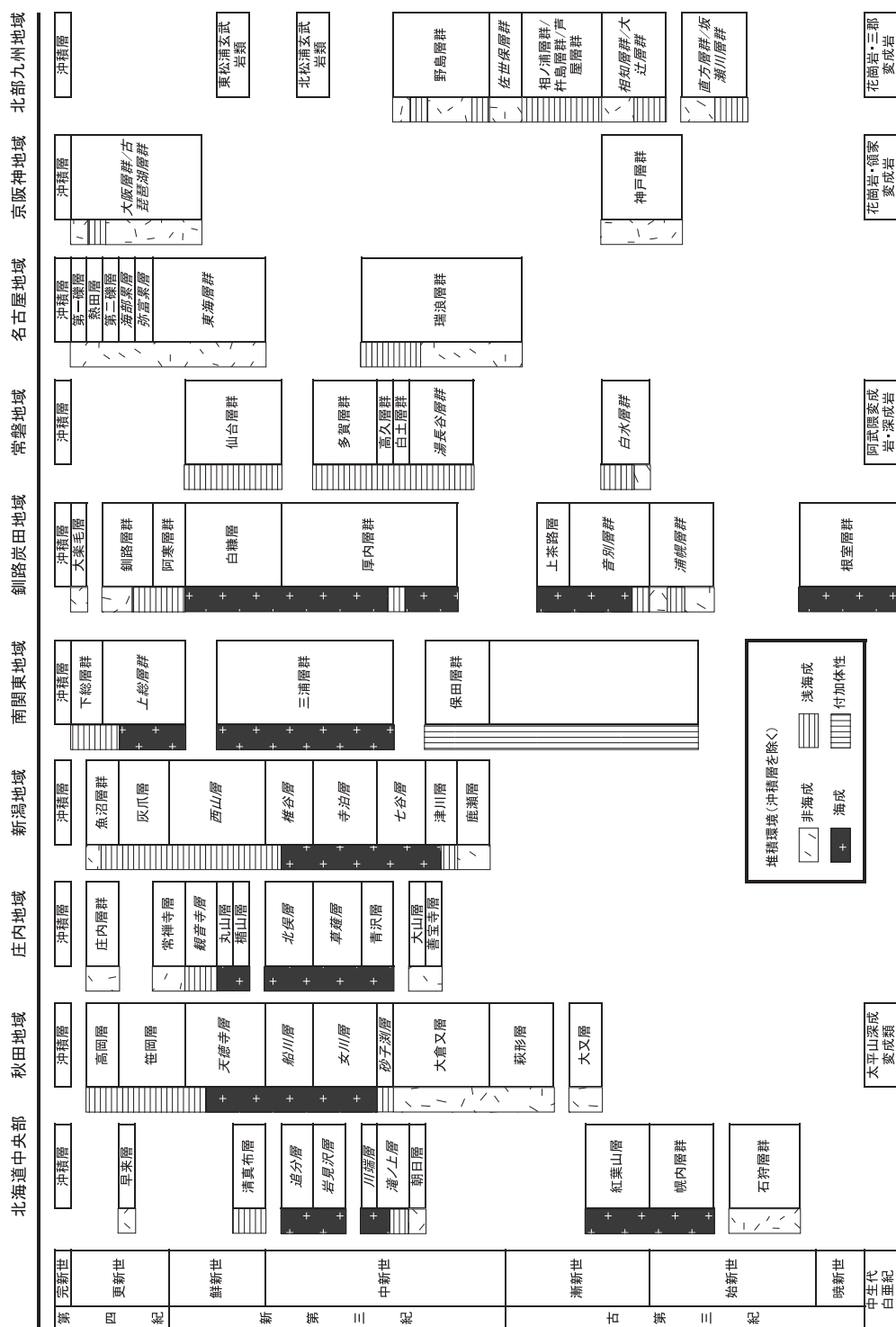


図 3 「地層水データーベース」構築の対象地域と層序・堆積環境の概略。市原ほか (1987), 牧野ほか (1989), 保柳ほか (1990), 松井 (1990), 鹿野ほか (1991), 鎌田ほか (1992) から集成。

Fig. 3 General stratigraphy and sedimentary environments in study areas. Compiled from Ichihara *et al.*, (1987), Makinouchi *et al.*, (1988a, b), Okami (1989), Hoya *et al.*, (1990), Matsui (1990), Kano *et al.*, (1991), and Kamata *et al.*, (1992).

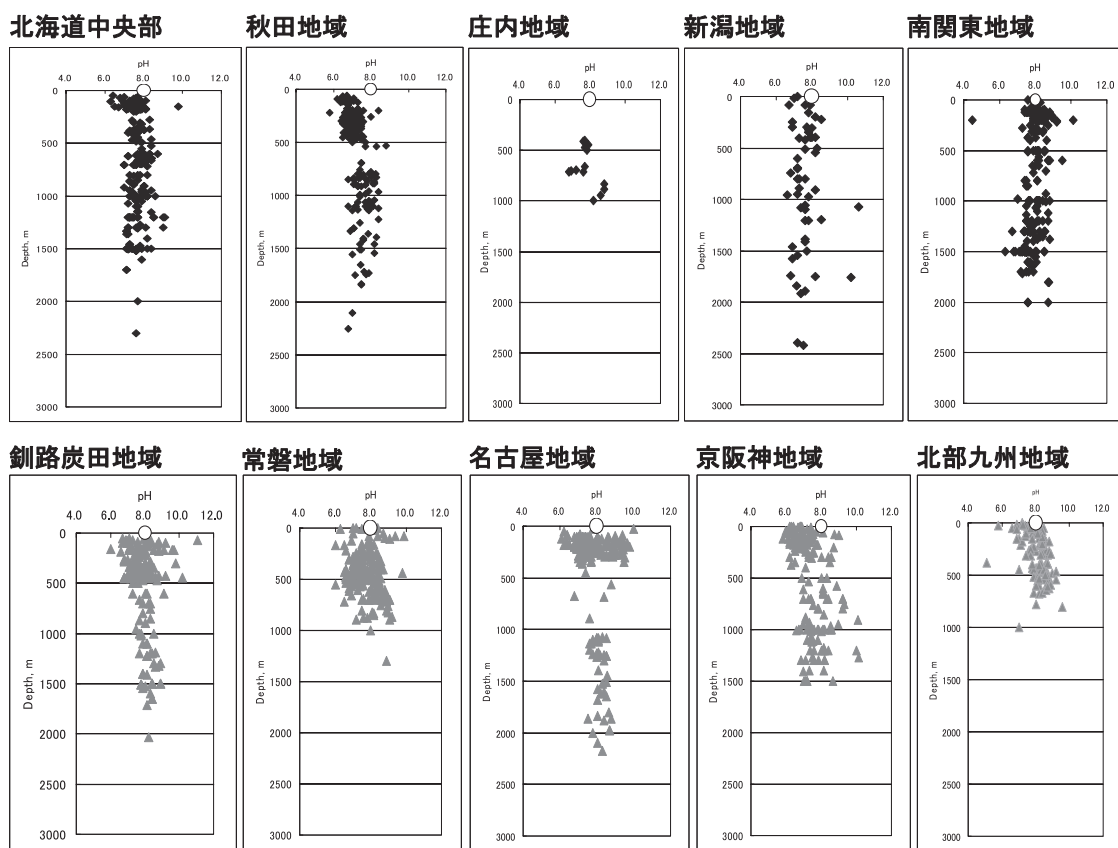


図 4 水素イオン濃度(pH)の深度分布. 上段が海成層地域, 下段が淡水成層分布地域. 大型の丸印は, 平均海水(北野, 1995)の値を示す.

Fig. 4 Distribution of hydrogen ion concentrations (pH) with depth in groundwater. The upper and lower rows indicate data from marine sedimentary areas and freshwater sedimentary areas, respectively. The large circular symbol in each figure indicates the pH value of average seawater (Kitano, 1995).

深部地下水の Cl^- 濃度と深度の関係を図 6 に示す。この図からは、海成層中の深部地下水でも Cl^- 濃度は全般に海水より希薄であることがわかる。南関東地域の上総層群中の深部地下水では、海水程度の Cl^- 濃度がまとまって分布するが、その一方で深度 1,000 m を超える深部であっても希薄な組成の地下水が数多く存在している。

秋田地域では、層序の中位にあたる深度 500–800 m にかけて Cl^- 濃度がピークに達する。中層で Cl^- 濃度が極大となるこのような分布は、後期鮮新世の地層である船川層中・下部に胚胎する深部地下水にて最も Cl^- 濃度が高いという、層序に

依存した特性(図 7)により生じたものと考えられる。秋田地域の深部地下水についてのこの特性は、同地域の油田かん水の古典的研究(本島ほか, 1960)にてすでに提唱されていたが、本研究で油田かん水以外のデータもくわえた上で確認した。 Cl^- 濃度分布に関する同様の層準規制は、吉村ほか(2004)によって新潟油田地域でも報告されている。これは、日本海側に分布する新第三紀層(いわゆるグリーンタフ第三系)での特徴と言えるかもしれない。

Cl^- は、淡水成層中の深部地下水においても最も主要な溶存陰イオンであることが多い。しかし

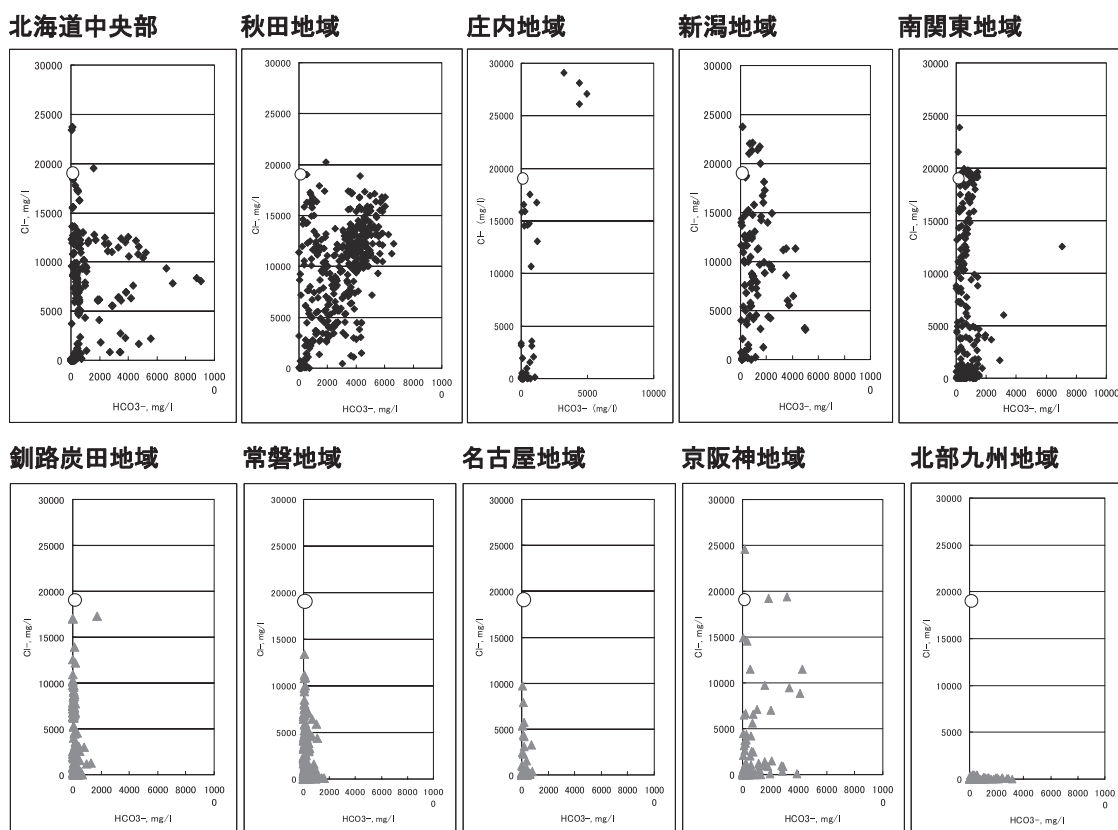


図 5 重炭酸イオン (HCO_3^-) 濃度と塩素イオン (Cl^-) 濃度の関係。上段が海成層地域，下段が淡水成層分布地域。大型の丸印は，平均海水（北野，1995）の値を示す。

Fig. 5 Relations between bicarbonate and chlorine ions in groundwater. The upper and lower rows indicate data from marine sedimentary areas and freshwater sedimentary areas, respectively. The large circular symbol in each figure indicates the bicarbonate concentration of average seawater (Kitano, 1995).

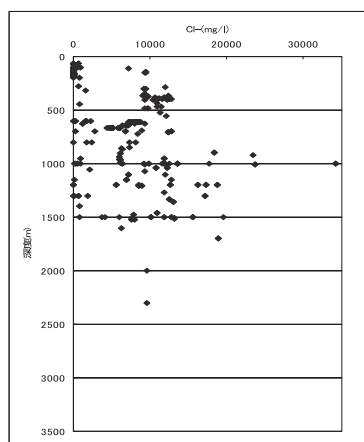
量的には全体に非常に希薄であり，濃度を海成層地域と同一スケールで示すと深度軸付近に分析値が集中する。胚胎層の地質時代が古い釧路地域，常磐地域では Cl^- のやや高いものも少なくない。また第四紀の厚い淡水成層が分布する名古屋地域および京阪神地域でも， Cl^- 濃度の高い分析値がしばしば認められる。これらは淡水成の地層に挟み込まれる海成もしくは浅海成の地層に由来する深部地下水のものと思われる。

3) 貯留層深度の地下水の組成と溶解トラップ特性

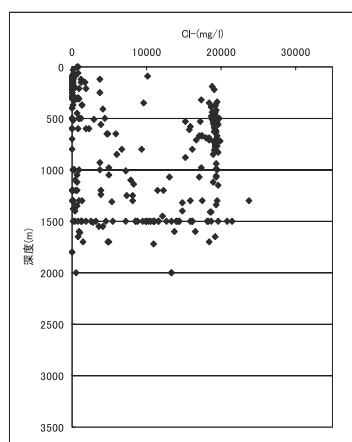
地中貯留で重要な 800 m より深い領域につい

て，地下水の Cl^- 濃度をヒストグラム化して図 8 に示す（ただし北部九州地域では基盤までの深度が浅く 800 m 以深の地下水データがごく少ないため，400 m 以深のデータを対象とする）。海成層地域と淡水成層地域では，前者のほうが Cl^- 濃度が高い。淡水成層地域の深部地下水は海成層地域よりはるかに希薄であり， Cl^- 濃度のピークはどの地域でも塩素イオン濃度 200 mg/l 以下にある。南関東地域の深部地下水は海水程度の Cl^- 濃度にピークをもつ。千葉県北部，茂原から東京湾岸にかけての地域で上総層群中の天然ガスを採取するためにくみ上げるかん水も，全般に海水程度の

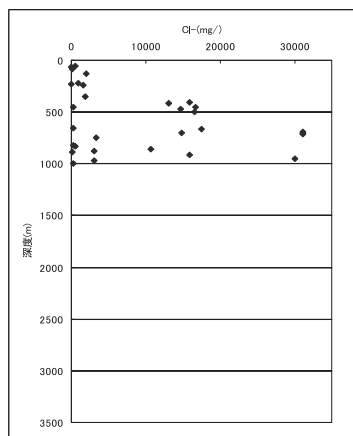
北海道中央部



南関東地域



庄内地域



新潟地域

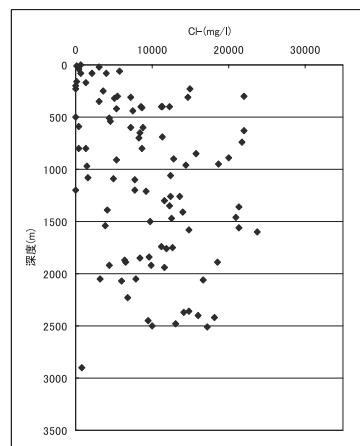


図 6 海成層地域での塩素イオン (Cl^-) 濃度の深度分布.

Fig. 6 Distribution of chlorine ion concentrations (Cl^-) with depth in groundwater of marine sedimentary areas.

Cl^- 濃度である（福田ほか, 1988; 相川, 1991）。しかし、同様に上総層群に胚胎する深部地下水でも、温泉利用されているものの中には希薄な組成のものも数多い。このため、上記地域でも平均 Cl^- 濃度は海水より低くなる。

南関東以外の海成層地域では、 Cl^- 濃度のピークは海水より低い側に存在する。個別のデータで Cl^- 濃度が海水を有意に上回る例は、北海道中央部・庄内地域・新潟地域に認められるが、量的に 30,000 mg/l を超えるものはごく少数である。し

たがってわが国の主要地域の地下では、大陸地域でしばしば認められる高濃度かん水（Eastoe *et al.*, 2001; Grasby and Chen, 2007; Shouakar-Stash *et al.*, 2007）に遭遇する可能性はほとんどないと言えるだろう。

貯留層条件での塩水に対する CO_2 溶解度は、溶存固形成分量（TDS）の増大とともに急速に低下し、海水相当では真水の溶解度の約 83% であるが、溶存固形成分量が 2 倍になると約 70% まで減少する。一方、溶存固形成分量が海水の半

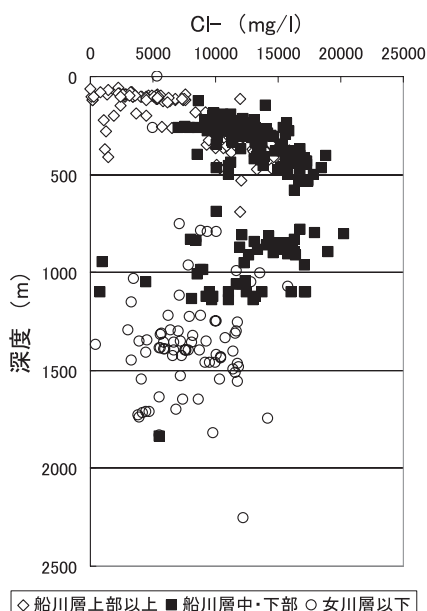


図 7 秋田地域での塩素イオン (Cl^-) 濃度の深度および深部地下水胚胎層別の分布.

Fig. 7 Distribution of chlorine ion concentrations (Cl^-) with depth and stratigraphy in groundwater of marine sedimentary Akita area.

分であると、 CO_2 溶解度は真水の約 95% である (Enick and Klara, 1990)。本研究によるわが国主要地域の深部地下水の Cl^- 濃度は、海水の 6-7 割程度である。 NaCl は深部地下水の最も重要な溶存成分であるので、上記程度の Cl^- 濃度からは深部地下水の塩分濃度は海水の 6-7 割程度と考えて差し支えない。したがって、それらの CO_2 溶解度は真水の 90% 程度と見込むことができよう。わが国の貯留層深度の深部地下水は、十分な CO_2 溶解ポテンシャルを有するといつて差し支えない。

4) 他の溶存種の傾向

Cl^- 濃度から見れば、わが国の主要地域の深部地下水は海成層に胚胎するものでも全般に海水より希薄であるが、成分によっては海水より高濃度のものも存在する。海成層地域の深部地下水の中で平均的に海水より高濃度に存在する成分は、 HCO_3^- 、全 Fe 、 Al^{3+} 、 SiO_2 、 I である。一般に

非常に希薄な組成である淡水成層地域の深部地下水でも、全 Fe 、 Al^{3+} 、 SiO_2 は海水より高濃度になっている。以上のような地化学モデリングにとって重要な成分が濃集することは、注目すべき特徴と言える。海水より低濃度で存在する成分でも、海水からの希釈度は Cl^- や Na^+ から算出される希釈度と必ずしも一致しない。

各種溶存成分の中でも、 Ca^{2+} の挙動は興味深い。海成層に胚胎する地下水の Ca^{2+} は Cl^- とともに増加するが、増加率は真水と海水の混合線を上回ることが多い (図 9)。わが国には Ca と Cl を極度に濃集した蒸発岩層は存在せず、また、海水より高濃度の塩水も例外的であるため、これらに起源する高 Ca 水と深部地下水の混合は考えにくい。海水との混合を上回る Ca^{2+} の溶存は、地下水を胚胎する岩層との何らかの地化学的相互作用を示唆する。

V. まとめ

CO_2 地中貯留において貯留層堆積岩を満たす深部地下水は、溶解トラップ機能を持つことと、 CO_2 と貯留層岩石との地化学反応を媒介する物質であるという 2 点において非常に重要である。地下での CO_2 の挙動を筋道立てて検討するために、貯留層深度での地下水の地化学的特性を把握することは欠かせない。

われわれは、国内主要地域の深部地下水組成をデータベース化し、地化学的特性を把握する研究を行ってきた。この「地層水データベース」の研究では、いわゆる大規模排出源立地地域を含む国内 10 地域について、主として公表資料から深部地下水の諸特性を集約してきた。この作業を通じて、わが国の主要地域では CO_2 貯留層に想定される深度付近の地下水が海水に比べて塩分濃度が希薄であることが多いことがわかってきた。塩分濃度が希薄であるほど CO_2 溶解度が高いことが実験的に知られており、このことから、わが国の貯留層深度の深部地下水は、十分な CO_2 溶解ポテンシャルを有するといつて差し支えないであろう。

全般に希薄とはいえ、溶存成分の中には海水に

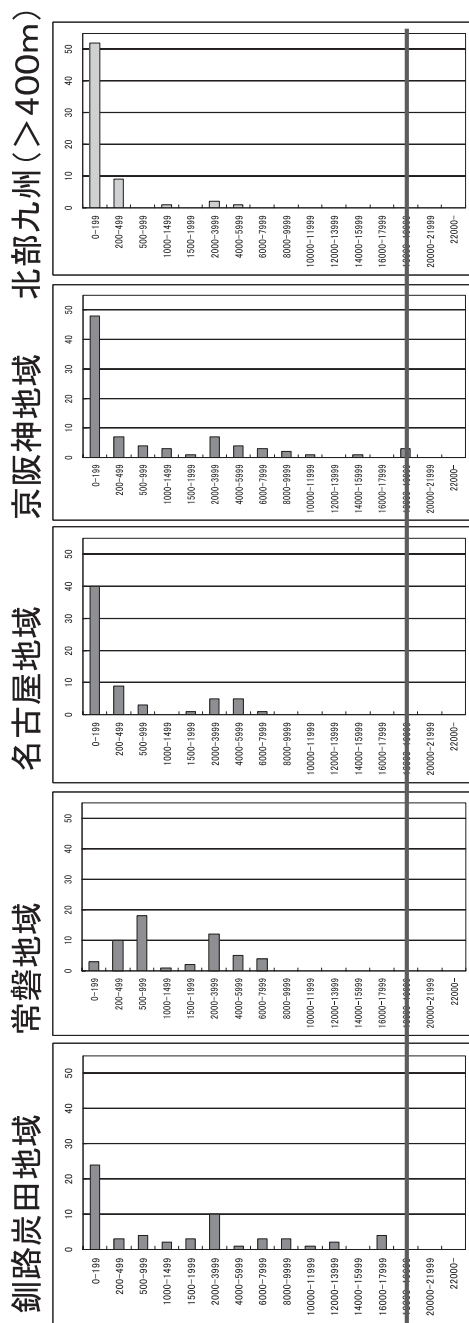
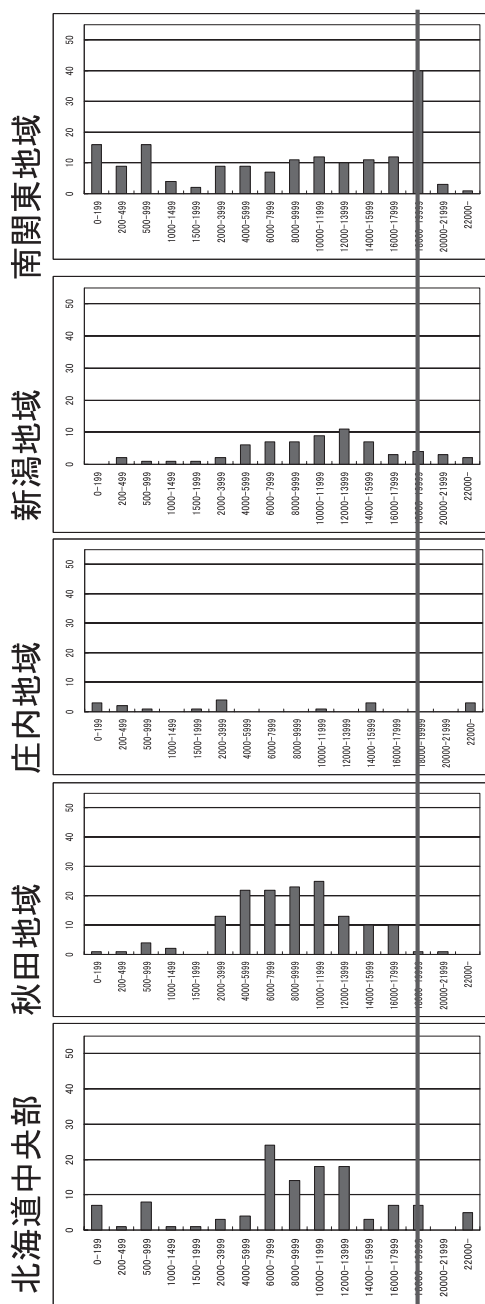


図 8 深さ 800 m 以下の深部地下水での塩素イオン (Cl^-) 濃度。上段が海成層分布地域、下段が淡水成層分布地域。太い横線は、平均海水での濃度 (19,000 mg/l) を示す。

Fig. 8 Histograms showing chlorine concentrations in groundwater of reservoir depths ($> 800 \text{ m}$). The upper and lower rows indicate data from marine sedimentary areas and freshwater sedimentary areas, respectively. The bold horizontal line in each row indicates Cl concentration in average seawater (19,000 mg/l).

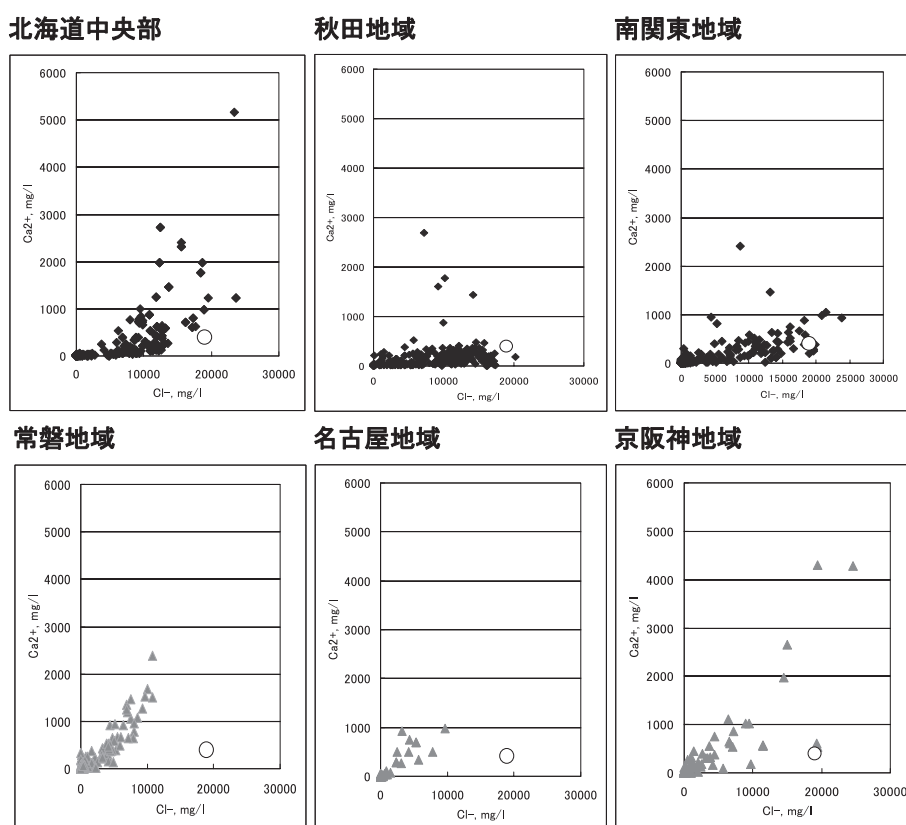


図9 北海道中央部・秋田地域・南関東地域（以上、海成層地域）・常磐地域・名古屋地域・京阪神地域（以上、淡水成層地域）でのカルシウム・イオン（ Ca^{2+} ）濃度と塩素イオン（ Cl^{-} ）濃度の関係。大型の丸印は、平均海水（北野, 1995）の値。

Fig. 9 Relations between calcium and chlorine ions in groundwater from marine sedimentary Ishikari, Akita, and Southern Kanto areas and from freshwater sedimentary Joban, Nagoya and Keihanshin areas. The large circular symbol in each figure indicates the pH value of average seawater (Kitano, 1995).

比べ濃集している成分もある。これらは深部地下水と胚胎する岩層との何らかの地化学的相互作用を示唆する。岩層との地化学的相互作用を岩石・鉱物レベルで検討する研究や、深部地下水そのものについてのより詳細な地化学的研究が、 CO_2 の地中挙動把握のためには必要である。しかし、「地層水データベース」に集約した既存データには、データの質の不ぞろいという問題があり、再解析に限界があることも事実である。地下水との相互作用を岩石の側から探索することで、深部地下水の水質形成を探索する方向も必要であろう。

従来わが国で研究が進められてきた CO_2 隔離は海洋貯留が中心であり、この場合の地化学プロセスは主として CO_2 -水（海水）間の現象であった。しかし地中貯留では、 CO_2 -水（地層水）-貯留層岩石という三者の相互作用として、地化学的相互作用を解析する必要がある。このために、地下の岩層や深部地下水について知見を持つ固体地球科学者が、主体的に研究に取り組むことが求められている。温暖化や二酸化炭素削減は地球の流体圏における問題・課題として発現しており、固体地球とは一見関係が薄いかのように見ら

れがちである。しかしながら、この社会的課題の解決にいまや固体地球科学者の力が求められていることを、本論から汲み取っていただければ幸いである。

謝 辞

本研究で紹介する「地層水データベース」の構築は、「二酸化炭素地中貯留技術研究開発」の一環として行っている。研究予算の支援をいただいた(財)地球環境産業技術研究機構に感謝いたします。佐藤久代さん(産総研)には、図の整理をお手伝いいただきました。本特集に投稿の機会を与えていただいた西澤 修氏(産総研)と當舎利行氏(産総研)に感謝いたします。

文 献

- 相川嘉正 (1991): 千葉県の温泉の化学—温泉およびガス田随水の化学成分. 温泉科学, **42**, 22-34.
- Benson, S. and Cook, P. (2005): Underground geological storage. in *IPCC Special Report on Carbon Capture and Storage* edited by Metz, B., Davidson, O., Coninck, H., Loos, M. and Meyer, L., Cambridge University Press, New York, 195-276.
- Bucher, K. and Frey, M. (1994): *Petrogenesis of Metamorphic Rocks*. Springer-Verlag, Heidelberg.
- 地球環境産業技術研究機構 (2007): 全国貯留貯存量調査. 二酸化炭素地中貯留技術研究開発平成 18 年度報告書.
- Eastoe, C.J., Long, A., Land, L.S. and Kyle, J.R. (2001): Stable chlorine isotopes in halite and brine from the Gulf Coast Basin: Brine genesis and evolution. *Chemical Geology*, **176**, 343-360.
- Ellis, D.J. and Hiroi, Y. (1997): Secondary siderite-oxide-sulphide and carbonate-andalusite assemblages in cordierite granulites from Sri Lanka: Post-granulite facies fluid evolution during uplift. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, **127**, 315-335.
- Enick, R.M. and Klara, S.M. (1990): CO₂ solubility in water and brine under reservoir conditions. *Chemical Engineering Communications*, **90**, 23-33.
- 藤永太郎・宗林由樹・一色健司 (2005): 海と湖の化学. 京都大学学術出版会, 560p.
- 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.
- Gale, J., Bachu, S., Bolland, O. and Xue, Z. (2007): To store or not to store? *International Journal of Greenhouse Gas Control*, **1**, 1-2.
- Grasby, S.E. and Chen, Z. (2007): Formation waters of the Beaufort Mackenzie Basin—deep biodegradation associated with rapid sedimentation and burial. *Proceedings of the 12th International Symposium on Water-Rock Interaction, Kunming*, Taylor and Francis Group, 501-504.
- 保柳康一・高橋功二・秋山雅彦 (1990): 新第三系 (2) 天北-羽幌-日高地域. 加藤 誠・勝井義雄・北川芳男・松井 愈編: 日本の地質 1—北海道. 共立出版, 100-106.
- 市原 実・吉川周作・橋本定樹・三田村宗樹・川辺孝幸 (1987): 新第三系および第四系 (3.3) 鮮新〜更新統. 中川圭二・市川浩一郎・市原 実編: 日本の地質 6—近畿地方. 共立出版, 131-157.
- IEA (2002): *World Energy Outlook-2002*. International Energy Agency of the Organization for Economic Co-operation and Development (OECD/IEA), Paris.
- IPCC (2005): *Special Report on Carbon Capture and Storage*. IPCC, Cambridge University Press, New York.
- 鎌田泰彦・富田宰臣・相原安津夫・田代正之・井上英二・高橋 清 (1992): 新生界 (3.2.1) 古第三系. 唐木田芳文・早坂祥三・長谷義隆編: 日本の地質 9—九州地方. 共立出版, 103-123.
- 鹿野和彦・加藤碩一・柳沢幸夫・吉田史郎 (1991): 日本の新生界層序と地史. 地質調査所報告, **274**.
- 北野 康 (1995): 水の科学. NHK ブックス.
- 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. *Energy Conversion and Management*, **33**, 619-626.
- 国立天文台編 (2007): 理科年表 (平成 19 年版). 丸善.
- 牧野内 猛・森 忍・竹村恵二・吉田史郎 (1988a): 東海層群. 山下 昇・紺野義夫・糸魚川淳二編: 日本の地質 5—中部地方Ⅱ. 共立出版, 130-140.
- 牧野内 猛・桑原 徹・木村一郎・森 一郎・山田 純 (1988b): 第四系 (5.4) 東海地域. 山下 昇・紺野義夫・糸魚川淳二編: 日本の地質 5—中部地方Ⅱ. 共立出版, 162-177.
- 松井 愈 (1990): 古第三系 (3.4) 北海道東部. 加藤 誠・勝井義雄・北川芳男・松井 愈編: 日本の地質 1—北海道. 共立出版, 56-61.
- McGrail, B.P., Reidel, S.P. and Schaef, H.T. (2003): Use and features of basalt formations for geological sequestration. *Proceedings of the 6th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, Kyoto*, Pergamon, **2**, 1637-1641.
- Mortis, G. (2002): Enhanced oil recovery. *Oil and Gas Journal*, **100**, 43-47.
- 本島公司・牧 真一・牧野登喜男・柴田 賢 (1960): 八橋油田鹹水の地球化学. 地質調査所報告, **186**, 1-81.
- 日本化学会編 (2003): 化学便覧 (改訂 5 版). 丸善.
- 大上和良 (1989): 白亜紀〜古第三系 (4) 双葉・石城・多賀地域. 生出慶司・中川久夫・蟹沢聰史編: 日本の地質 2—北海道. 共立出版, 78-80.
- Shouakar-Stash, O., Frape, S.K., Hobbs, M.Y. and Kennell, L. (2007): Origin and evolution of waters from Paleozoic formations, Southern Ontario, Can-

- ada: Additional evidence from $\delta^{37}\text{Cl}$ and $\delta^{81}\text{Cl}$ isotopic signatures. *Proceedings of the 12th International Symposium on Water-Rock Interaction Kunming*, Taylor and Francis Group, 537-542.
- Stevens, S.H., Kuuskra, V.A. and Gale, J. (2001): Sequestration of CO_2 in depleted oil and gas fields: Global capacity, costs and barriers. *Proceedings of the 5th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, Cairns*, CSIRO Publishing, 278-283.
- 歌田 実 (1978): 続成作用における地層水の組成変化. 田口一雄・飯島 東・青柳柳一編: ダイアジェネシス. 地質学論集, **15**, 151-164.
- 吉村公孝・山本修一・桑原 徹・正木美佳・横井 悟・高橋利宏 (2004): ナチュラル・アナログ的見地によるわが国の化石塩水の特徴. 応用地質学会平成 16 年度研究発表会講演論文集, 129-132.
- (2007 年 10 月 5 日受付, 2008 年 6 月 26 日受理)