

CO<sub>2</sub>とバイオベース反応性増粘流体を用いた革新的岩石破碎技術(東北大学) <sup>わたなべ</sup>○渡邊 <sup>のりあき</sup>則昭

## 1. はじめに

地熱発電、二酸化炭素の地中貯留(CCS)、再生可能エネルギー由来の水素の地下貯留など、地下エネルギーインフラの構築においては、深度 1000～5000 m、温度 30～300℃程度の岩盤に高浸透性のき裂を形成し、流体の通路を人工的に確保する技術が不可欠である。近年は、より安全・効率的で環境負荷の少ない技術の開発が強く求められている。

従来の水圧破碎法は、坑井からの流体圧入によって岩石を破壊する単純な力学的技術であるが、高圧注入による誘発地震の懸念、中程度の浸透性を有する岩石での流体損失やき裂開口の困難さ、さらには開口後の維持の困難さなど、技術的・環境的限界が顕在化している。このような背景を受け、化学的手法、特にグリーンケミストリーに基づく革新的破碎法の開発が求められている。

著者らの研究グループは近年、低粘度で岩石への浸透・刺激が可能な超臨界 CO<sub>2</sub>と、析出物の生成を抑制しつつ鉱物溶解を加速する植物由来・生分解性キレート剤(グルタミン酸二酢酸:GLDA)、および微生物由来・耐熱性増粘多糖類(スクレログルカン)を含むバイオベース反応性増粘流体を用いた、低圧・高効率・プロパント不要の革新的岩石破碎技術「CO<sub>2</sub>リアクティブフラクチャリング」の研究開発を開始した。本講演では、本技術の着想、開発経緯、およびその有効性に関する成果と今後の展望について紹介する。

2. CO<sub>2</sub>リアクティブフラクチャリングの着想に至るまでの背景

著者らの研究グループはこれまで、超臨界 CO<sub>2</sub>や超臨界水など「超低粘度流体(粘度:

100 μPa・s 以下)」を用いた地熱貯留層造成に関する研究を展開してきた。その中で、超低粘度流体が比較的低压でのき裂形成を可能にすることや、形成されたき裂の浸透性の変化挙動を明らかにしてきた(例:Watanabe et al., 2017, Nature Geoscience ; 2019, Scientific Reports ; Pramudyo et al., 2022, Rock Mechanics and Rock Engineering)。これらの成果は、NEDO の超臨界地熱発電技術および JOGMEC によるカーボンリサイクル CO<sub>2</sub>地熱発電技術の研究開発に活かされてきた。

しかし、流体圧入を伴う限り、天然き裂のせん断すべりによる誘発地震のリスクは避けられず、破碎の適用は最小限に抑える必要がある。そこで注目されるのが、鉱物溶解によって浸透性を向上させる化学的手法との併用である。

従来の化学的刺激法では塩酸やフッ酸が用いられてきたが、これらは反応性が高すぎて多様な鉱物と複雑な反応を引き起こし、析出による浸透性低下や有効範囲の狭さといった課題があった。そこで著者らは、JAPEX とともに、金属イオンと安定な錯体を形成することで析出を抑制し、鉱物溶解を促進できる植物由来・生分解性キレート剤 GLDA に着目し、200℃程度の高温環境にも耐える環境調和型鉱物溶解技術を開発した(特許第 7115692 号)。この技術は、Watanabe et al. (2021, Scientific Reports), Pramudyo et al. (2024, Geoenergy Science and Engineering)などにより学術的妥当性が示され、GFZ(ドイツ地球科学研究センター)やエルサルバドル大学との国際共同研究を通じて地熱応用展開が進んでいる(例:Salalá et al., 2024, Geothermics; Muhl et al., 2025, Geothermics)。

さらにこの技術は、より低温(100℃未満)の

条件下における CO<sub>2</sub>地中貯留と鉱物固定の促進や、天然水素生成・回収技術としての応用可能性も示されている(Wang et al., 2024, Science Advances ; Salalá et al., 2025, Communications Earth & Environment, 2025 ; 特許第 7726549 号;特願 2025-069581)。そのため本技術は JOGMEC 先進的 CCS 支援事業に関連した JAPEx との研究や NEDO フロンティア育成事業における天然水素に関する研究開発に組み込まれている。

一方、新潟県の天然ガス貯留層を対象とした INPEX との研究や、JOGMEC によるカーボンリサイクル CO<sub>2</sub>地熱発電技術に関する研究開発において、著者らは「中程度の浸透性を持つ岩石では、き裂形成後に流体がリークし、き裂が開口しない(いわゆる『暖簾に腕押し』状態になる)」という現象を明らかにした。

この課題を解決するには高粘度流体の使用が望ましいが、一方で粘度を上げると破砕圧力が上昇し、誘発地震のリスクが高まるというジレンマがあった。これを打破すべく、現在進行中の上記 JOGMEC プロジェクトにおいて、JOGMEC および GERD とともに、低粘度の CO<sub>2</sub>で初期き裂を形成した後、高粘度の水で開口・進展させる「CO<sub>2</sub>水押破砕」を提案・開発している(Takuma et al., 2024, Geothermics ; Pramudyo et al., 2024, Geothermics ; 特願 2024-09484)。

ただしこの手法でも、高温下でのプロパントの長期安定性や輸送困難性といった課題は依然として残されていた。

### 3. CO<sub>2</sub>リアクティブフラクチャリングに関する研究開発の成果

このような背景から著者らは、CO<sub>2</sub>水押破砕における水の代替として GLDA 水溶液を用い、鉱物溶解によってき裂面に凹凸を形成し、耐応力・高浸透性流路を構築する手法(特願 2025-97500)を JOGMEC および GERD とともに考案した。

先行研究では、GLDA が黒雲母などの特定の鉱物を選択的に溶解して形成された孔隙が連結することで不均一な溶解が進行し、高浸透性流路が形成されることが示されている(Takahashi et al., 2023, Geothermics)。しかし、水圧破砕の比較的短時間のプロセスでは、GLDA 単独による効果は限定的である可能性が高い。

そこで、鉱物溶解の律速因子であるケイ素(Si)の溶出を促進するために、マイルドな HF 源としてフッ化水素アンモニウム(NH<sub>4</sub>HF<sub>2</sub>)を少量添加することを着想した。また、過剰な反応によって均一溶解となり凹凸形成が阻害されるリスクを回避するため、流速増加時に粘度が低下する性質(シアニング)を持つ増粘剤を併用し、流体流動を高浸透性領域に集中させる設計とした。増粘剤はまた、き裂外への流体損失抑制にも寄与する。

このようにして、GLDA、スクレログルカン、NH<sub>4</sub>HF<sub>2</sub>を含む水溶液からなるバイオベース反応性増粘流体を考案し(特願 2025-77753)、150°C・封圧下における安山岩質凝灰岩および花崗岩コアを用いた流通実験を実施した。その結果、約 4 時間で鉱物溶解により耐応力・高浸透性流路が形成され、浸透性が 5 倍以上向上することを実証した。

さらに、150°C・真三軸応力下における安山岩質凝灰岩ブロックを用いた CO<sub>2</sub>リアクティブフラクチャリング実験では、CO<sub>2</sub>水押破砕による浸透性の向上が約 4 倍であったのに対し、本技術では 15 倍程度の向上が確認され、その有効性が示唆された。今後、実験と数値解析を通じて有効性の更なる検証と鉱物溶解と岩石破砕が連成して進行する現象のメカニズムの解明を進める計画である。

**謝辞:**本研究の一部は科研費(No. 22H02015, No. 21K18200 , No. 22H04932 , No. 23H01903, No. 23K23283, No. 23K26596, No. 24K01412)による助成を受けたものである。