

研究成果報告書

研 究 題 目		ハイドレート堆積土の熱特性と加熱法による分解特性の評価	実 施 年 度 平成 30 年度
代 表 研 究 者	所 属	山口大学 大学院創成科学研究科	
	氏 名	吉本 憲正	印

1. 研究の目的・背景

近年，日本周辺海域に存在するメタンハイドレート（以下 MH と略す）が新たな天然ガス資源として期待されている．MH を生産回収するために減圧法や加熱法などが生産手法として提案されている．現在，最も有力な生産手法は，経済性の観点や実現可能性の点から減圧法とされている．しかしながら，減圧法では MH 分解時の吸熱反応により，周囲の熱が奪われ温度が低下する．それにより MH の分解は，周囲の温度が低下し平衡に達することにより停止する．したがって，減圧法では全てのメタンガスの回収ができず，回収率が低くなることが問題となっている．そのような問題を解決する方法として，初期段階で減圧法を適用して MH をある程度生産する．上記により生産できなかった MH を加熱法を適用し生産する．つまり，二次回収的に適用する手法が考えられている．

そこで本研究では，加熱法に着目し，海底下の環境を再現可能な恒温高压平面ひずみ実験装置を使用し，MH 濃集層から試錐された砂質堆積物を分析した研究結果を元に再現した模擬試料に MH を生成させることで，加熱による MH 分解中の温度挙動，圧力挙動を調査することを目的とした．また，生産性増進化技術として加熱法を用いるには，数値シミュレーションを行う必要があるが，熱物性を把握することが数値シミュレーションの精度向上に繋がる．そこで，試料の熱物性を取得する目的で一次元の温度制御透水カラム実験機を開発し，加熱分解実験を行い，温度挙動，圧力挙動を確認した．そして実験結果を逆解析するため一次元熱伝導解析プログラムを開発し，熱物性を取得することを目的とした．

2. 研究成果及び考察（申請時の計画に対する達成度合を織込む）

1) MH 分解中の温度・圧力挙動の調査

海底下の環境を再現可能な恒温高压平面ひずみ実験装置を使用し，目標値の MH 飽和率，間隙率となるように含水比を調整し，不飽和供試体を作製後，MH 安定境界内の温度および圧力を保つことで MH を生成させ，供試体内を水で飽和し，間隙圧 10MPa，有効拘束圧 3MPa の等方圧密を行う．その後，初期温度 10℃に制御し，ペDESTALヒーターを 80℃に保ちながら供試体下部からの加熱を行うことで，MH 加熱分解実験を行った．その際の温度，圧力，ガス量を実験機に設置されている熱電対，圧力計，シリンジポンプ移動量により計測した．実験には，豊浦砂，MH 濃集層を模擬した細粒分含有率の異なる 2 つの試料（以下 Tb, Tc と略す）を用いた．細粒分含有率は Tb=8.9%，Tc=22.9%となっており，Tb，

Tc の順で平均粒径が小さくなる。

実験結果として、MH を含む豊浦砂の各熱電対位置における加熱時の温度の経時変化を図-1 に示す。MH の存在が温度挙動に与える影響を確認するため、MH を含まない試料の温度の経時変化についても併せて示している。また、圧力 10MPa における MH 分解温度 13.53℃を黒実線で図中に示す。MH を含むことで温度が一定時間停滞または低下する挙動を示すことが確認でき、各試料においても同様に、MH を含むことで温度が一定時間停滞または低下する挙動を示すことが確認できた。特に各試料の熱電対 C、D では、MH 安定境界線付近において、顕著に一定時間温度が停滞または低下する挙動を示すことが確認できる。次に細粒分含有率とメタンガス産出終了時間及び最大間隙圧の関係を図-2 に示す。本実験条件では、試料の細粒分含有率が増加することでガス産出終了時間が早くなり、下部最大間隙圧が上昇する結果が得られた。これらの結果から、細粒分を含まず浸透性が高い場合では、加熱により供試体下部の温度が 10MPa における MH 安定境界線である 13.53℃を超えると、MH が分解した際に生じるメ

タンガスが、13.53℃よりも低い温度の供試体上部に急速に移動するため、供試体上部において MH が再生成され、間隙を閉塞し、供試体上下間での間隙の連続性が失われると同時に浸透性が著しく低下することで、結果として産出終了時間が遅くなると考えられる。加えて、供試体下部に残留していた MH が分解することでメタンガスが発生し、下部の間隙圧が上昇したと考えられる。一方で、細粒分含有率が高くなるにつれて浸透性が低下することが、一般に知られており、本研究結果は逆の結果といえる。それについては、細粒分含有率が高い場合は浸透性が低く、MH を分解した際に生じるメタンガスの移動速度が遅くなることで、メタンガスが供試体上部に移動している間に下端より加熱された熱が上部へと伝わり、供試体上部の方まで温度上昇するため、再生成が困難な環境となることが考えられ、結果として、総合的にメタンガス生産終了時間が早くなったと考えられる。

2) 試料の熱物性の把握

一次元の温度制御透水カラム実験装置の特徴は、モールドとして低熱伝導率素材を使用し、許容圧力を 1MPa 以上とすることで、MH と結晶構造が同様のキセノンハイドレート（以下 XeH と略す）を生成可能とすることで一次的にハイドレート含有砂の温度挙動

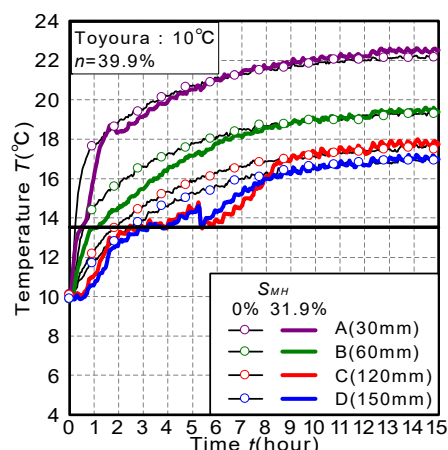


図-1 加熱時の温度の経時変化(豊浦砂)

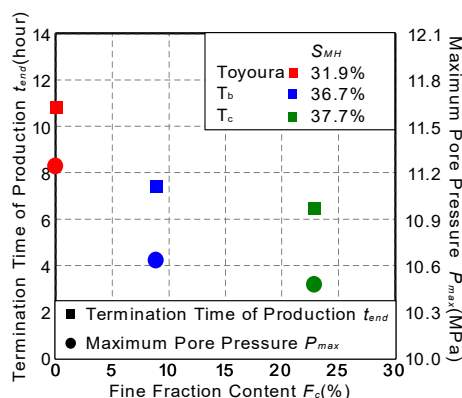


図-2 細粒分含有率とガス産出終了時間及び最大間隙圧の関係

を把握できる点である．実験は目標値の XeH 飽和率，間隙率となるように含水比を調整し，不飽和供試体を作製後，XeH 安定境界内の温度および圧力を保つことで XeH を生成させた．その後，供試体内を水で飽和し，間隙圧 600kPa，初期温度 10℃ に制御し，ペデスタルヒーターを 80℃ に保ちながら供試体下部から加熱を行うことで，XeH 加熱分解実験を行った．その際の温度，圧力，ガス量を実験装置に設置されている熱電対，圧力計，シリンジポンプ移動量により計測した．また，一次元熱伝導解析プログラムを作成し，温度制御透水カラム実験装置の実験結果に対して逆解析を実施し，実験では把握できない熱電対間での温度挙動を表現することで熱伝導率の取得，シミュレーションによる温度の経時変化について評価した．供試体を均質な連続体と仮定することで，次に示す一次元熱伝導支配方程式が適用できる．

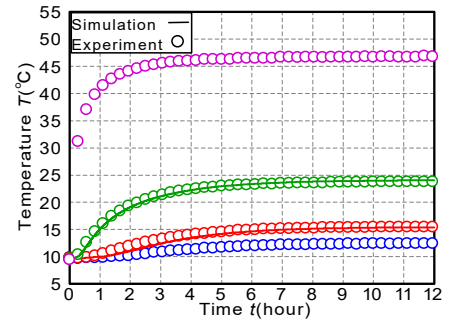


図-3 Tc の実験結果と解析結果の比較

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \quad (1)$$

ここで， ρ : 材料の密度(kg/m³)， c : 比熱(J/(kg・K))， T : 温度(K)， t : 時間(sec)， λ : 熱伝導率(W/m・K)， z : 供試体下端からの高さ(m)である．また，(1)式を差分式に変形するため，それぞれ前進差分式，中心差分式に展開し，熱損失項を加えると，

$$T_{z,t+\Delta t} = \frac{\lambda \Delta t}{\rho c (\Delta z)^2} (T_{z-\Delta z,t} - 2T_{z,t} + T_{z+\Delta z,t}) + T_{z,t} + ET_{z,t} \quad (2)$$

となる．ここで， $T_{z,t}$: 時刻 t ，位置 z における温度(K)， $T_{z,t+\Delta t}$: Δt 後の位置 z における温度(K)， $T_{z-\Delta z,t}$: 時刻 t における位置 z から Δz だけ下側の位置における温度(K)， $T_{z+\Delta z,t}$: 時刻 t における位置 z から Δz だけ上側の位置における温度(K)， Δz : 節点間距離(m)である．

飽和された Tc の実験結果と解析結果の比較を図-3 に示す．図より，下部に設置された熱電対ほど加熱初期に急激な温度上昇が見られ，その後，緩やかに上昇し，定常状態に至る．また，この時の Tc の熱伝導率は， $\lambda=2.50$ (W/m・K)であった．既往の研究より飽和された豊浦砂の熱伝導率 $\lambda=2.25$ (W/m・K)と比較すると，小数点 1 位以下においてのみ，熱伝導率に違いがないことがわかった．次に，豊浦砂を用いて，生成した XeH が分解しない条件で加熱実験を行い，XeH 含有砂の熱伝導率を逆解析したところ， $\lambda=7.00$ (W/m・K)が得られた．XeH を含むことで熱伝導率が大幅に上昇した原因として，XeH が土粒子間のメニスカスに生成されることで土粒子間を繋ぐ役割となり，伝熱効果を高めることが考えら

れる。

これらの熱伝導率を用い、XeH を含有している豊浦砂の実験値を境界条件としたシミュレーションによる温度の経時変化について図-4 に示す。シミュレーションを行い、熱電対 A, B 間の温度の経時変化を 1cm ごとに示す。シミュレーション結果より、供試体下端より 50mm 位置までが 13.50℃に到達していることが分かる。一方、実験において、XeH を分解することにより発生したキセノンガス量から求めた XeH の分解範囲は、供試体下端から 56mm までとなった。これら両者の結果から、シミュレーションに用いた逆解析で得られた熱伝導率は、妥当なものであるといえ、パラメータの適切な同定が出来たといえる。

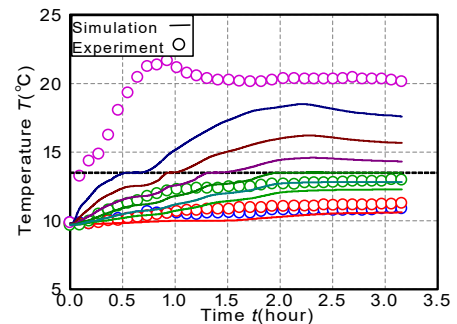


図-4 XeH 含有砂のシミュレーション結果

【申請時の計画に対する達成度合】

本研究成果は、当初計画の約 90%を達成できたと判断している。達成できなかった 10%は、装置開発に時間を要し、実験結果が当初より少ないことによる。

3. 経費の使用状況（申請時の計画に対する実績を記述）

設備備品費については、当初の計画に即して、一次元熱移動実験用カラム装置の改造費と圧力センサーの購入費として主に使用した。熱移動特性を調べる実験でキセノンガスを使用するという困難さもあり、装置に工夫が必要で改造費を増やさざるを得なくなった。そのため、当初は、熱電対を購入するための費用を計上していたが、それらは、別の研究経費で補うこととした。消耗品についても、改造に付随するものが多く、当初計上していた額よりも多くなっている。その部分は、改造の方法を変更するなどして、全体のバランスを図っている。このような若干の変動はあったが、装置の改造を重点的にを行い、研究を遂行することが出来た。

使用内訳は、設備備品費 546,102 円（申請時 1,770,000 円）、消耗品費 379,098 円（申請時 10,000 円）、旅費 74,800 円（申請時 120,000 円）であり、他に申請時は、謝金 100,000 円であった。

主な購入設備備品費：

温度制御カラム装置の改造、供試体内の圧力計測用のセンサー

4. 将来展望（今後の発展性、実用化の見込み等について記述）

本研究では、細粒分含有率の異なる試料を用いて、それらに MH を生成させることで、MH 含有砂を作成し供試体として実験を行った。加熱法の適用を模擬して、MH を加熱分解した結果、熱の伝わり方と分解したメタンガスの移動速度の関係から、分解領域に達していない範囲では、分解したメタンガスがハイドレート化するなど、当初、想定していない結果が得られた。一次元カラム実験では、逆解析による検討を行うことで、ハイドレートの有無の違いによる熱伝導率の違いを適切に評価できた。これらの成果は、世の中にほとんどないものであり、貴重なものと言える。この実験結果や評価結果は、実際の生産中の現象を捉えたものと考えられることから、生産効率の改善などへ展開できるものと期待できる。特に、生産のシミュレーションにおいては、得られた結果を利用することで精度の向上に大きな影響を及ぼすものと考えられ、現状より精度の高いモデルの開発も可能となると考えられる。このように、本研究を通して得られる情報は、生産性に密接に関連するものであるため、成果の適切な利用により、エネルギー資源の自給へ繋がることや、同様に MH を資源として保有している諸外国へ生産手法の技術の開発の一助になる可能性がある。

5. 成果の発表（学会での発表、学術誌への投稿等を記載。予定を含む）

- 1) 藤田一輝, 吉本憲正, 中田幸男, 梶山慎太郎, 兵動正幸: 加熱法を用いたメタンハイドレート含有砂の分解時の圧力・温度・変形挙動, 平成 30 年度(第 70 回)土木学会中国支部研究発表会発表概要集, pp.239-242, 2018.5.
- 2) 藤田一輝, 吉本憲正, 中田幸男, 梶山慎太郎: 加熱法による細粒分を含むメタンハイドレート含有砂の分解実験とその考察, 第 53 回地盤工学研究発表会講演集, pp.433-434, 2018.7.
- 3) Yoshimoto, N., Wu, Q., Fujita, K., Nakata, Y., Kajiya, S. and Hyodo, M.: Dissociation and deformation characteristics of MHBS under local thermal stimulation, 投稿予定