

戦略的創造研究推進事業 CREST  
研究領域「エネルギー高効率利用のための相界面  
科学」  
研究課題「海洋メタンハイドレート層のマルチスケール  
界面輸送現象の解明と大規模メタン生成への展開」

## 研究終了報告書

研究期間 2013年10月～2019年3月

研究代表者：圓山 重直  
(東北大学流体科学研究所 客員教授)

## § 1 研究実施の概要

### (1) 実施概要

本研究は、日本近海に存在する国産エネルギー資源メタンハイドレート(以下、MH)をエネルギー源として利用し、二酸化炭素の低排出発電に向けた MH 発電システムを実現すべく、その基礎学理となる MH 層からメタンを抽出するメカニズムの解明により大規模メタン産出に資するため、MH 層の固・気・液マイクロ界面現象を明らかにし、MH 層内のマクロスケール熱物質移動と化学反応のモデル化を行い、さらに実際のメガスケールの高圧 MH 地層内メタン生成への展開を行うことを目標としている。

MH を利用したエネルギーシステムを実現する上で、まず経済的に成立するかを評価した。メタンガス産出速度を増加することができれば、再生可能エネルギー価格より価格を下げ、火力発電相当の価格へ近づけることが可能であることが示唆された。その点を踏まえ、メタンガス生産速度を向上可能なシステムの一形態として、MH 利用発電システムのボトルネックの解決策として縦井戸式バッチシステムを考案した。本プロジェクトで構築したガス生産シミュレーションより、MH 層を 5°C 上昇させると生産速度が 1.1~3.5 倍になることが示唆された。MH 層の予熱によるガス生産を踏まえ、発電システムの性能解析を行い、発電排熱を二酸化炭素分離・回収および MH 層の予熱に利用することで、システム全体のエネルギーロスがほぼ無くなり、システムの熱効率を約 43%と高く保つことが可能になり、「高効率、低二酸化炭素排出」を同時に達成できることを示唆した。

メタンガス生産速度を議論するうえで、ガス生産中に経時変化する地層の浸透率と、ガスの発生と氷の生成に直接関与する解離メカニズムが重要となる。そこで、これらの課題を明らかにするため、浸透率については未固結層に生じる亀裂進展、解離メカニズムについては、MH 表面でのケージ状態の評価および解離プロセスにおける MH 界面近傍の熱物質移動を評価した。

MH 表面におけるメタン占有率と解離速度および律速過程の関連を明らかにする目的で、ラマン分光法を用いた MH におけるメタン占有率の in-situ 計測を行った。まず、種々の条件下における MH 生成とそのメタン占有率の関係を明らかにした。実験値と MH 中の各ケージ占有率を Langmuir 型の吸着式で仮定した推算値を比較すると、絶対値としてのそれらの値は概ね一致していることがわかり、安定領域内での測定結果は文献値とも良好に一致した。また、占有率比推算モデルとも良好に一致した。減圧過程の経時変化については、MH 解離モデルを構築しそれに基づき解析を行うと、MH 膜厚をより薄くし、解離圧力をさらに低下させることで顕著な変化を得られることが予測された。

MH 解離現象での律速過程を明らかにするためには、MH 界面濃度の非定常変化や、濃度勾配を正確に評価する必要がある。MH とガスの固気界面における輸送現象を計測するために高速位相シフト干渉計の開発と評価を行った。干渉計で計測するために薄膜 MH を生成する手法を構築し、そのサンプルを計測した結果、減圧により分解した MH 界面近傍の特異な非定常密度変化を定量的にとらえ、活性化エネルギーを仮定した数値計算との比較の結果、分解現象は拡散律速でなく、反応律速に近い状態であることが予測された。

これらの成果を総合し、海洋 MH からエネルギーを生産するにあたり、提案した地層の予熱という手法は、反応律速である解離反応の促進と、吸熱反応による氷生成の防止、氷生成阻害による地層内流路の確保などに作用し、結果としてメタンガスの生産速度増加に寄与することが示唆された。

### (2) 顕著な成果

< 優れた基礎研究としての成果 >

#### 1. メタンハイドレート解離の界面反応－熱物質輸送過程の高精度計測と律速過程評価概要:

メタンハイドレート(以下、MH)からのメタン解離機構解明および MH 分解モデルの構築に必要な MH 分解現象の律速過程を明らかにすることを目的とし、マッハツェンダー型位相シフト干渉計を用いて MH 界面近傍での非定常熱・物質輸送の定量計測を行った。計測の結果、

減圧により分解した MH 界面近傍の特異な非定常密度変化を定量的にとらえ、活性化エネルギーを仮定した数値計算との比較の結果、分解現象は拡散律速でなく、反応律速に近い状態であることが予測された。

## 2. メタンハイドレート解離界面における分解機構の計測とモデリング

概要:

MH からの CH<sub>4</sub> 解離現象の詳細な解析を目的とし、ラマン分光法に基づく占有率の実験的解析を行った。安定領域内での測定結果は文献値とも良好に一致した。また、占有率比推算モデルとも良好に一致した。減圧過程の経時変化については、MH 解離モデルを構築しそれに基づき解析を行うと、MH 膜厚をより薄くし、解離圧力をさらに低下させることで顕著な変化を得られることが予測された。

## 3. 小型メタンハイドレート岩石解離現象の実験的評価と数値モデリング

概要:

実験室内で合成した小型 MH 岩石の解離実験を行い、減圧により内部に氷膜が生成することを示した。サンプルの初期温度を上昇させることで、メタン生成量も増加し、加熱による増産効果を示唆した。減圧法においては生産初期段階においてコアの温度低下による顕熱がメタンガスの生産に及ぼす影響が大きいことが示唆された。したがって、生産手法として減圧法を利用する場合にメタンガスの生産速度を速めるためには、MH 貯留層の初期温度を高めることが重要であることが明らかになった。

< 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

### 1. 海洋メタンハイドレートのエネルギー利用の経済性評価

概要:

MH を利用したエネルギーシステムを実現する上で経済的に成立するかを評価した。海洋産出試験では平均 20,000m<sup>3</sup>/day のメタンガス生産があったが、この産出量で提案システムを運転した場合、洋上風力発電の電気価格に相当することがわかった。一方で、単位時間当たりのメタンガス産出量を増加することができれば、再生可能エネルギー価格より価格を下げ、火力発電相当の価格へ近づけることが可能であることが示唆された。この結果から、本研究を達成するためのボトルネックとしてメタンガスの単位時間当たりの生産量を増大することで提案システムを経済的に成立させることが必要であることが示された。

### 2. 海洋メタンハイドレート有効利用のための縦井戸式バッチシステムの提案

概要:

メタンガスの高い生産率を実現するためにはエネルギー産出比の高い減圧法と回収率の高い加熱法の長所を活かした生産手法の確立が必要である。つまり減圧法のボトルネックとなる熱問題を解決することが生産量向上に繋がることを明らかにした。メタンガスの生産量を増加させるために、縦井戸式バッチシステムを考案した。予測されるガス生産量を踏まえ、発電システムの性能解析を行い、発電排熱を二酸化炭素分離・回収および MH 層の予熱に利用することで、システム全体のエネルギーロスがほぼ無くなり、システムの熱効率を約 43%と高く保つことが可能になり、「高効率、低二酸化炭素排出」を同時に達成できることを示唆した。

### 3. フラクチャリングによるメタンハイドレートの分解と流路形成過程

概要:

メタンハイドレート(MH)開発において、坑井と周囲地層との流動性を確保することは、生産性、出砂防止の観点からも非常に重要である。本研究では、MH 層で作成したフラクチャーに流体を注入し、フラクチャー周囲で MH を分解させ、高浸透領域を維持するという新しい MH 分解フラクチャリング法を提案した。数値シミュレーションを用いて、MH 層への流体注入によってフラクチャー周囲に高浸透領域を形成できる可能性を示した。

<代表的な論文>

1. Yuki Kanda, Eita Shoji, Lin Chen, Junnosuke Okajima, Atsuki Komiya, and Shigenao Maruyama, "Measurement of transient heat transfer in vicinity of gas-liquid interface using high-speed phase-shifting interferometer", *International Communications in Heat and Mass Transfer*, Vol. 89, No., pp. 57-63, 2017
2. Lin Chen, Yongchang Feng, Takuma Kogawa, Junnosuke Okajima, Atsuki Komiya, and Shigenao Maruyama, "Construction and simulation of reservoir scale layered model for production and utilization of methane hydrate: The case of Nankai Trough Japan", *Energy*, Vol. 143, No., pp. 128-140, 2018
3. L. Chen, H. Sasaki, T. Watanabe, J. Okajima, A. Komiya, and S. Maruyama, "Production Strategy for Oceanic Methane Hydrate Extraction and Power Generation with Carbon Capture and Storage (CCS)", *Energy*, Vol. 126, pp. 256-272, 2017.

## § 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 「圓山」グループ

研究代表者: 圓山 重直 (東北大学流体科学研究所 客員教授)

研究項目

- MH の生成・分解反応とマイクロ界面輸送の解明
- 相変化を伴う固気液三相熱流動現象の解明
- 洋上メタンガス利用システムの検討

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

本プロジェクトを推進するにあたり、平成 27 年度より東北大学工学研究科化学工学専攻の **Smith Richard** 教授とその研究グループにメンバーに加わってもらった。新たな共同研究がスタートし、本プロジェクトも強力に推進することができた。

多孔質体の物質移動問題の世界的権威である、フランス流体力学研究所の **Quintard** 教授との共同研究を進めている。同研究所の多孔質体研究グループへ学生をインターンシップ派遣し、共同で MH 解離現象の数値モデリングの研究を行った。共同研究は現在も継続している。

また、産業界等にも本システムをアピールしている。日本国内の新エネルギーとして本 MH 発電の提案を企業や官庁に提案している。一般向けに著書「みんなの熱科学 (研究代表者著)」内および日経産業新聞コラム「テクノオンライン」で情報発信をしている。

以上より、ネットワーク形成は十分であると考えている。