

地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化技術の研究

Research on Stabilization of Methane Hydrate Reservoir
by Grout Material

2023年7月

劉 雨晨
Yuchen LIU

地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化技術の研究

Research on Stabilization of Methane Hydrate Reservoir
by Grout Material

2023年7月

早稲田大学大学院 創造理工学研究科
地球・環境資源理工学専攻 石油工学研究

劉 雨晨
Yuchen LIU

Abstract

Methane hydrate (MH) , has been considered as a new resource of natural gas in the future. However, in the past several field production tests, serious sand problems occurred during the depressurization, because the sand grains in shallow formations without intensive compaction lost their solidarity, separated from each other, fluidized and migrated into the production well. To solve this problem, we proposed a method to stabilize a MH reservoir in 2018, which injects chemicals including inhibitor(s) and grout material(s) into the reservoir, combining loose sand grains artificially to form a porous grout body around the wellbore with sufficient permeabilities and strengths. This method has granted patents in Japan and the US in 2022.

To verify the applicability and potential of this method, we developed a series of apparatus systems using TBAB hydrate (TH) and *iso*-Butane hydrate (*i*-BH), which have much lower equilibrium pressures than MH, and conducted a series of experiments as follows. First, we confirmed that the grout material could prevent a sand problem from a water saturated formation but remaining its permeability. Then, we confirmed the compatibility of TBAB/TH to the cement grout that it would be appropriate as the alternative of MH, and discussed the method to create *i*-BH cores within accurate saturations. After that, we conducted the grout injections to hydrated cores, and confirmed the 4 key points of the applicability, that the cement grout could be injected into a hydrated cores with a saturation up to 60%, consolidated at a low temperature of 0°C, and created grouted cores with sufficient permeabilities and uniaxial compressive strength (UCSs). Furthermore, we proposed a method to improve the injectability to high-saturated cores/reservoirs by inhibitor pre-injection, and verified its effect in 80% saturated cores. In addition, we conducted a series of quantitative experiments to elucidate the influence factors to the reservoir stabilization, including field and operation conditions. Finally, we conducted case studies to explore the potential of this method, and obtained grouted cores with sufficient permeabilities (ave=374mD) and UCSs (ave=6.08MPa) which would be promising for MH reservoir stabilization.

Keywords: methane hydrate, sand problem, TBAB hydrate, *iso*-Butane hydrate, grout material, formation stabilization, apparatus development, gas behaviors, physical properties

目次

| | | |
|------------|---------------------------------|----|
| 第1章 | はじめに | 1 |
| 1.1 | 研究背景 | 2 |
| 1.2 | 研究目的 | 2 |
| 1.3 | 研究手法 | 3 |
| 1.4 | 研究時期と体制 | 3 |
| 1.5 | 論文構成 | 4 |
| 第2章 | 基礎理論 | 7 |
| 2.1 | メタンハイドレートとは | 8 |
| 2.1.1 | 形成メカニズム | 8 |
| 2.1.2 | 分子構造 | 8 |
| 2.1.3 | 性質 | 10 |
| 2.2 | メタンハイドレートの生産 | 13 |
| 2.2.1 | 生産手法 | 13 |
| 2.2.1.1 | 加熱法 | 13 |
| 2.2.1.2 | 減圧法 | 15 |
| 2.2.1.3 | 分解促進剤（インヒビター）投入法 | 16 |
| 2.2.1.4 | 異種ガス置換法 | 18 |
| 2.2.1.5 | 固形流化法 | 19 |
| 2.2.1.6 | ハイブリッド法 | 20 |
| 2.2.2 | 過去の産出試験 | 22 |
| 2.2.2.1 | カナダ・Mallik 第1回陸上産出試験（2002） | 24 |
| 2.2.2.2 | カナダ・Mallik 第2回陸上産出試験（2007～2008） | 24 |

| | | |
|------------|--------------------------------|-----------|
| 2.2.2.3 | 米国・アラスカ陸上産出試験（2012） | 24 |
| 2.2.2.4 | 日本・第1回海洋産出試験（2013） | 25 |
| 2.2.2.5 | 日本・第2回海洋産出試験（2017） | 25 |
| 2.2.2.6 | 中国（中国地質調査局ほか）・海洋産出試験（2017） | 26 |
| 2.2.2.7 | 中国（西南石油大学・中国海洋石油）・海洋産出試験（2017） | 26 |
| 2.3 | 地盤改良及び地盤改良材 | 29 |
| 2.3.1 | 地盤改良とは | 29 |
| 2.3.2 | 地盤注入法とは | 30 |
| 2.3.3 | 地盤改良材の種類と特性 | 31 |
| 2.4 | まとめ | 34 |
| 第3章 | 先行研究 | 35 |
| 3.1 | 従来の出砂対策について | 36 |
| 3.1.1 | スクリーン法 | 36 |
| 3.1.2 | グラベル充填法 | 36 |
| 3.1.3 | グラベルパック・スクリーン法 | 37 |
| 3.1.4 | 多孔質記憶ポリマー法 | 37 |
| 3.1.5 | 防砂剤注入法 | 39 |
| 3.1.6 | RCSによる人工坑壁造成法 | 39 |
| 3.2 | メタンハイドレート層を対象とした安定化対策 | 41 |
| 3.2.1 | 微生物活動による生成物を利用した土砂固化法 | 41 |
| 3.2.2 | 発泡グラウトによる海底未成岩メタンハイドレート層の改造方法 | 45 |
| 3.3 | まとめ | 49 |
| 第4章 | 技術提案 | 50 |
| 4.1 | 提案概要 | 51 |

| | | |
|--------------|--------------------------------|-----------|
| 4.1.1 | 手法 1 (地盤改良剤による砂粒子固化法) | 51 |
| 4.1.2 | 手法 2 (自己硬化性粒子による人工砂岩造成法) | 54 |
| 4.2 | 課題 | 57 |
| 第 5 章 | 実験設計 | 59 |
| 5.1 | 設計思想 | 60 |
| 5.2 | ハイドレート生成物質 | 63 |
| 5.2.1 | TBAB 及び TBAB ハイドレート | 63 |
| 5.2.2 | イソブタン及びイソブタンハイドレート | 67 |
| 5.3 | 地層モデル及び供試体の材料 | 71 |
| 5.4 | 地盤改良材の選定 | 75 |
| 5.5 | 評価指標の選定 | 78 |
| 5.6 | 実験装置の設計, 製作, 及びその運用手順 | 81 |
| 5.6.1 | 共通設計要件 | 81 |
| 5.6.2 | 1 号機 | 94 |
| 5.6.3 | 2 号機 | 96 |
| 5.6.4 | 3 号機 | 97 |
| 5.6.5 | 新 3 号機 | 102 |
| 5.6.6 | 4 号機 A | 104 |
| 5.6.7 | 4 号機 B | 106 |
| 5.6.8 | 多連式供試体自動作成装置 | 109 |
| 5.6.9 | 冷却恒温水槽 | 112 |
| 5.6.10 | 定量排水装置 | 116 |
| 5.6.11 | 改良剤の配合, 注入装置 (水層・TBAB ハイドレート用) | 119 |
| 5.6.12 | 薬剤注入・生産レート測定装置 (イソブタンハイドレート用) | 121 |

| | | |
|------------|-----------------------------|------------|
| 5.6.13 | 浸透率測定装置 | 123 |
| 5.6.13.1 | ハイドレートを含まない供試体 | 123 |
| 5.6.13.2 | TBAB ハイドレートを含む供試体 | 124 |
| 5.6.13.3 | イソブタンハイドレートを含む供試体 | 127 |
| 5.6.14 | 一軸圧縮強度測定 | 133 |
| 第6章 | 予備実験 | 137 |
| 6.1 | 水層を想定した水槽実験 | 138 |
| 6.2 | TBAB による地盤改良剤効果への影響評価 | 142 |
| 6.3 | TH 充填供試体の初期浸透率特性 | 145 |
| 6.4 | 氷粒子による i-BH の生成実験 | 147 |
| 6.5 | 砂供試体における i-BH の生成実験 | 152 |
| 6.6 | i-BH 飽和率の制御方法の検討 | 155 |
| 6.7 | 供試体の温度が安定になる時間の計測 | 161 |
| 6.8 | ガス種による浸透率計測値の補正係数の検討 | 163 |
| 第7章 | 本実験 | 165 |
| 7.1 | ハイドレート層における本手法の適用性の検討 | 166 |
| 7.1.1 | 改良剤の注入可否 | 166 |
| 7.1.2 | 改良剤の固化可否および改良体の物性 | 170 |
| 7.1.3 | 注入効果向上手法の提案と検証 | 174 |
| 7.1.4 | 分解ガス発生時における適用性 | 182 |
| 7.2 | 本手法の効果への影響要素の検討 | 186 |
| 7.2.1 | 砂層の粒径分布 | 188 |
| 7.2.2 | 初期 MH 飽和率 | 192 |
| 7.2.3 | 地層水の初期塩分濃度 | 201 |

| | | |
|-------------|------------------|------------|
| 7.2.4 | 地層温度と養生時間 | 203 |
| 7.2.5 | 改良剤の配合温度 | 208 |
| 7.2.6 | インヒビターの濃度 | 211 |
| 7.2.7 | インヒビターの注入停止タイミング | 215 |
| 7.2.8 | 改良剤の濃度 | 219 |
| 7.2.9 | 促進剤の濃度 | 221 |
| 7.2.10 | ハイドレート層の浸透率改善方式 | 223 |
| 7.2.11 | 改良剤の注入停止タイミング | 227 |
| 7.3 | ケーススタディ | 232 |
| 第8章 | 考察 | 236 |
| 8.1 | 実験手法の開発について | 237 |
| 8.2 | 本手法の適用性について | 239 |
| 8.3 | 本手法の影響要素について | 241 |
| 8.2 | 本手法の有望性について | 243 |
| 第9章 | まとめ | 244 |
| 9.1 | 本研究のまとめ | 245 |
| 9.2 | 本手法に係る課題および今後の展望 | 246 |
| 謝辞 | | 252 |
| 1 | 大学関係者 | 252 |
| 2 | 親族 | 253 |
| 3 | 法人団体 | 254 |
| 4 | その他本研究に寄与してくれた方々 | 254 |
| 参考文献 | | 257 |

第 1 章 はじめに

本章では，本研究の背景，目的，研究手法，各段階の時期と実施体制，および本論文の構成について説明する．

- 研究背景
- 研究目的
- 研究手法
- 研究時期と体制
- 論文構成

1.1 研究背景

メタンハイドレート（以下，MH と記す）は，膨大な資源量や偏在性の小さい分布から，新たな天然ガス資源として注目されている．その賦存形態により，海床近くに集積する表層型 MH と，砂層やシルト層の孔隙に充填する孔隙充填型 MH に分類される．孔隙充填型 MH の生産手法としては，過去の産出試験などにより，減圧法の有効性が検証されている．しかし，MH が賦存する浅い堆積層は粒子の固結度が弱く，MH も砂粒子を固着する役割を果たしている．そのため，MH の分解により砂粒子同士の固着が弱まり，地層の強度が低下する．さらに，強減圧に伴う有効応力の上昇により地層が破壊し，固着を失った砂粒子は水の流動に伴い坑内に流れ込み，出砂障害となる．すなわち，MH が分解した後の砂層は，強減圧に耐えられる強度を有しないことが出砂の原因と言える（山本，2009）．MH 層からの出砂を防ぐためには，過去の海洋産出試験においてグラベルパック・スクリーンや，GeoFORM™(Baker Hughes Inc.) の設置などの工夫をされたが，いずれも出砂を完全に防ぐことができず，その効果が不十分であることが明らかになった（メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・山本，2017）．

一方，土木工学では，主に軟弱地盤を対象に地盤改良を行うことがある．工事対象の規模や目的，ならびに建造物の用途や特性から，地盤改良には多くの工法が挙げられる．その中に，対象深度までボーリング孔を掘削し，対象地層に地盤改良剤を注入し，土砂粒子を人工的に固着させることで地盤の強度を高める薬液注入工法がある．同工法は，ボーリング孔（坑井）から流動性を有する薬剤を地中に注入する実施形態や，対象地層の土砂粒子を固着させる地層強化効果から，MH の安定生産を目的とした貯留層の安定化改良にも適用できると考えられる．

このような背景を踏まえ，本研究では，石油工学と土木工学を融合したアイデアとして，MH をはじめとするガスハイドレート層に砂粒子を固着できる改良剤を注入し，貯留層の浸透性をある程度に維持しながら地層の強度を向上させるハイドレート層の安定化改良手法（以下：劉・栗原法）を提案した．その後，MH より低圧

で生成・維持できる模擬ハイドレート 2 種類を用いた実験システムを設計・製作し，本手法の有効性を検証した．

1.2 研究目的

本研究の目的は以下に示す（重要度・優先度順）．

- a) 模擬ハイドレートを含めた砂層試料における劉・栗原法の有効性やポテンシャルを検証し，実際の MH 生産に適用する際の効果を見極める．
- b) 劉・栗原法により造成された改良体の物性特性およびその影響要素を解明し，数値シミュレーションによる操業条件の決定や生産挙動の予測に参照データを提供する．
- c) 劉・栗原法の適用限界や問題点を洗い出し，それを補うための手法開発や更なる研究に資する．
- d) 実験装置やシステムの設計や製作を通じて，研究者としての技術力の向上を図る．

1.3 研究手法

本研究では，生成と維持に高圧が必要とされる MH の代わりに，常圧または低圧で安全かつ効率的に作製できる模擬ハイドレート 2 種類を用いて模擬砂層試料を作製し，そこに地盤改良剤を注入する室内実験を行った．実験では，薬剤注入の可否，注入時の各相流体の挙動および養生後の供試体の物性等から，本手法の適用性・有望性を評価した．また，上記実験の実施にあたって，模擬ハイドレートの生成物質による改良剤の効果への影響の有無や，模擬ハイドレートの生成特性を解明し，均質で適切な飽和率を有する模擬ハイドレート試料を量産化するための一連の予備実験も行った．

1.4 研究時期と体制

本研究は，2018 年 4 月からスタートし，2022 年 9 月まで実験を行った．各年度・時期の実施内容，実施体制および役割分担を以下に示す（表 1-1）．

表 1-1 本研究の実施体制と役割分担（貢献度・関与度順）

| 年度/時期 ※1 | 実施内容 | 研究立案 | 資機材調達 | 装置製作 | 実験実施 | 学会発表論文執筆 | 研究指導 |
|-------------------------|----------------------------------|-----------|-------|------|------|----------|------|
| 2017/10 ～ 2018/04 | 入学手続き | 劉 | | | | | 栗 |
| 2018/04 ～ 2018/08 | 文献調査 特許出願 研究立案 | 劉/栗/ 周 | | | | | 栗 |
| 2018/08 ～ 2020/08 | 学術論文1編目に 係る実験 論文執筆 査読対応 | 劉/栗 | 劉 | 劉/外 | 劉/リ | 劉/栗 | 栗 |
| 2020/09 ～ 2021/07 | 砂泥互層における本 手法の適用性実験※ 2 | 栗/劉/ リ | 劉/リ | 劉/リ | リ/劉 | | 栗 |
| 2021/02 ～ 2022/09 | 学術論文2編目に 係る実験 論文執筆 査読対応 | 劉/栗 | 劉 | 劉/伊 | 劉 | 劉/栗 | 栗 |
| 2022/10 ～2023/2 | 博士論文執筆および 学位申請, ほか | | | | | 劉/栗 | 栗/古 |

※1：一部同時進行のため，時期が重なることがある．

※2：本研究論文に反映していない．

凡例：

劉：劉 雨晨 博士課程／助手

リ：リイキン 科目履修生／修士課程

栗：栗原正典 教授，指導教官

古：古井健二 准教授／教授，副指導教官

伊：伊東克己 技術職員

周：周 玉華 当時：中石化勝利油田魯明油氣勘探開發有限公司
首席専門家

現：E & P 国際商事株式会社 代表取締役

外：外注業者

1.5 論文構成

本研究論文は、以下の 9 章から構成される。

第 1 章：はじめに

本研究の背景，目的，研究手法，実施体制及び論文の構成について説明する。

第 2 章：基礎理論

MH の性質，生産手法，過去の産出試験と出砂問題，および土木工学における地盤改良材など，本研究分野に関する基礎理論について説明する。

第 3 章：先行研究

在来型の石油・ガス生産のための出砂対策技術の紹介や，MH 層を対象とした出砂対策の既存提案について説明する。

第 4 章：技術提案

MH の開発生産における出砂問題を解決するために提案した，地盤改良剤による MH 層の安定化手法（劉・栗原法）について説明する。

第 5 章：実験設計

劉・栗原法を検証するための実験設計（模擬ハイドレート等の材料の選定，評価指標の検討，実験装置の設計と製作等）について説明する。

第 6 章：予備実験

水層における地盤改良剤の出砂防止効果と改良体の浸透性の有無，実験薬品による改良剤効果への影響の有無，模擬ハイドレートの生成特性，および模擬ハイドレート供試体の量産方法について検討した。

第 7 章：本実験

模擬ハイドレート 2 種類を用いて，地盤改良剤の注入および固結の可否，固結後の物性から本手法の適用性を評価し，またその適用性（安定化効果）を向上させるための手法を提案・検証した。その上，本手法による改良体の物性に影響を与える要素を検討し，それを踏まえて改良体のポテンシャルを探るケーススタディを行った。

第 8 章：考察

前記の実験結果から，本手法の特徴や実際の MH 層に適用する際の注意事項や予期効果について考察する．

第 9 章：まとめ

本研究のまとめと今後の展望について述べる．

第 2 章 基礎理論

本章では，メタンハイドレートの分子構造，性質，生産手法，過去の産出試験と問題点，及び土木工学分野における地盤改良工法と改良材について説明する．

- メタンハイドレートとは
- メタンハイドレートの生産
- 地盤改良及び地盤改良材

2.1 メタンハイドレートとは

メタンハイドレート(MH)は、ガスハイドレートの1種であり、外見が氷に近いことと分解後に可燃性のメタンガスを発生することから、燃える氷(Ferry ice)とも呼ばれている。この節では、MHの形成メカニズム、分子構造、及びその性質について説明する。

2.1.1 形成メカニズム

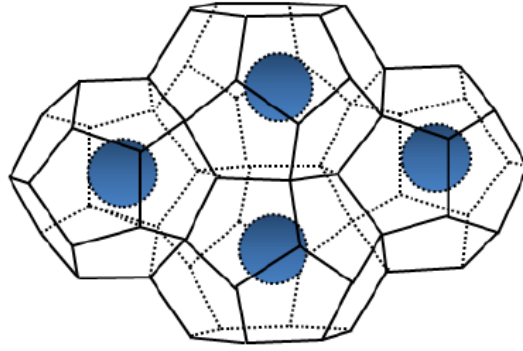
水分子は、それを構成する水素原子及び酸素原子の相互作用により水素結合を形成する。水素結合は、イオン結合や共有結合といった通常の化学結合より遥かに弱い、ファンデルワールス力より遥かに大きいことから、水分子同士を連結して格子構造を形成できる。特に、0℃以下の水では、大量の水素結合により六方系の格子を中心とする籠状構造が形成し、固形の氷へと変わる。その籠状構造には、比較的により大きいスペースが存在することから、ほかの物質の分子を取り込むことができる。このように、ほかの物質の分子(以下、ゲスト分子)を取り込んだものを包接水和物(clathrate hydrate)と呼ばれる。そのうち、常温常圧において気体を呈する物質(ガス)をゲスト分子として包接したものはガスハイドレートと呼ばれる。また、ゲスト分子の種類や、温度、圧力条件により、異なる籠構造を形成することができる。なお、既知の籠構造は、以下の5種類が挙げられる。

表 2-1 既知の包接水和物の籠構造 (安田, 2014)

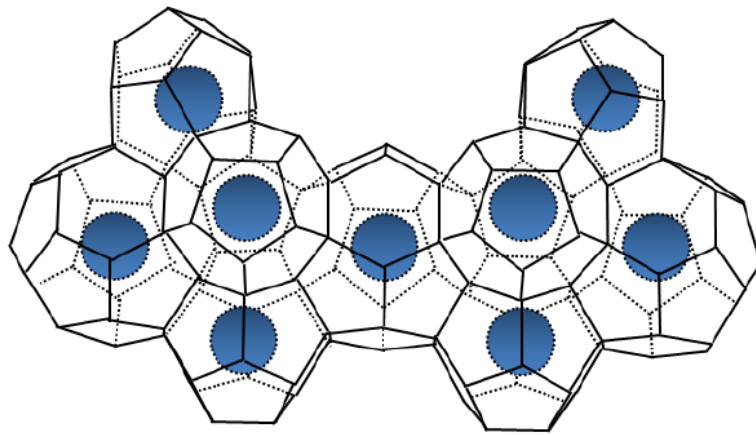
| 表記 | 構造説明 |
|-------------|--|
| 5^{12} | 5 角形 12 面体 |
| $5^{12}6^2$ | 5 角形 12 枚と 6 角形 2 枚で構成される 14 面体 |
| $5^{12}6^4$ | 5 角形 12 枚と 6 角形 4 枚で構成される 16 面体 |
| $5^{12}6^8$ | 5 角形 12 枚と 6 角形 8 枚で構成される 20 面体 |
| $4^35^66^3$ | 4 角形 3 枚, 5 角形 6 枚, 6 角形 3 枚で構成される 12 面体 |

2.1.2 分子構造

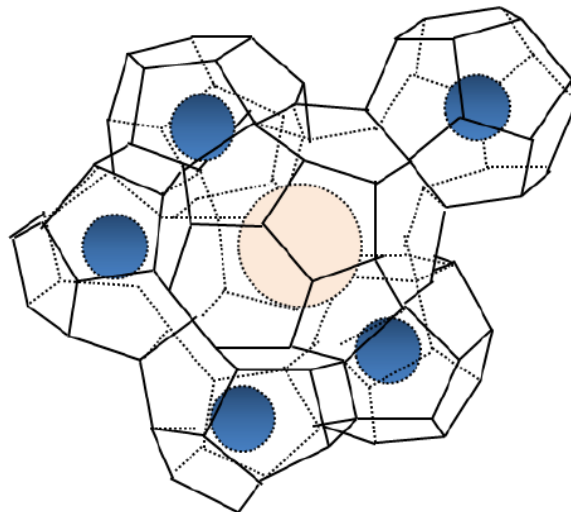
既知の包接水和物の結晶構造は、図 2-1 に示す 3 種類があり、それぞれ I 型、II 型および H 型と呼ばれる。



(a)



(b)



(c)

図 2-1 包接水和物の結晶構造 (安田, 2014)

a- I 型, b- II 型, c- H 型

I型構造は、1単位格子あたり 5^{12} 籠 2個と $5^{12}6^2$ 籠 6個から構成され、そこに 46個の水分子が含まれる。また、この構造には、ゲスト分子 8個を格納できることから、その分子式をと $8(\text{Guest}) \cdot 46\text{H}_2\text{O}$ または $(\text{Guest}) \cdot 5.75\text{H}_2\text{O}$ と表記できる。MHの籠構造はこのタイプである。

また、II型構造は、1単位格子あたり 5^{12} 籠 16個と $5^{12}6^4$ 籠 8個から構成され、そこに 136個の水分子が含まれる。また、この構造には、ゲスト分子 8個を格納できることから、その分子式をと $8(\text{Guest}) \cdot 136\text{H}_2\text{O}$ または $(\text{Guest}) \cdot 17\text{H}_2\text{O}$ と表記できる。代表的なものは、プロパン(C_3H_8)ハイドレート、イソブタン($\text{iso-C}_4\text{H}_{10}$)ハイドレートが挙げられる。

一方、H型構造は、1単位格子あたり 5^{12} 籠 3個、 $5^{12}6^8$ 籠 1個、および $4^35^66^3$ 籠 2個から構成され、そこに 34個の水分子が含まれる。この構造は、小さい籠 5個と大きい籠 1個があることから、小さい籠を構築してくれるゲスト分子が存在した条件では比較的大きいゲスト分子をも格納できる特徴がある。例えば、ノルマルブタン($\text{n-C}_4\text{H}_{10}$)は単独でガスハイドレートを生成できないが、H型籠を構築してくれる他の分子(メタンなど)が存在した場合は包接されることも可能である(Heng-Joo NG & D.B.Robinson, 1976)。

2.1.3 性質

包接水和物は、上記の形成メカニズムと分子構造から、以下の性質を有する。

- 水素結合ができやすい低温条件、かつガス分子を籠に押し込みやすい高圧条件において安定するため、温度を上昇または圧力を低下させた場合に分解する。図 2-2 には、ガスハイドレートの代表例である MH の平衡相図を示す。MH を生成、維持するには、水の氷点 (0°C) では約 2.5MPa 、水の最大密度を示す 4°C では約 4MPa 、また地表付近の常温 (20°C) では約 28MPa が必要とされる。地球上においてこのような温度、圧力条件を有するのは、水深 400m 以深の海底および凍土層に限られることから、自然形成の MH は主に海床、海底地層

および極地や高原の凍土層に分布している。また、その賦存形態からは、表層型 MH と砂層型 MH に分類される。ほかには、海洋ガス田の生産管路の海底区間や寒冷地を通るガスパイプラインにおいてもこの温度圧力条件を満たすことから、MH の生成により管路が塞がれるケースが見られる。

- ガスハイドレートの安定性は水素結合に依存するため、水素結合の形成を阻害することでガスハイドレートの生成を抑制することが可能である。このような効果を有する物質はインヒビター (Inhibitor, 生成阻害剤) と呼ばれる。例えば、前記のガスパイプラインにおいて管路内に MH の生成を防ぐためには、MH の生成を抑制するメタノール (CH_3OH) を使用することがある。また、塩分の存在もガスハイドレートの形成に阻害する効果がある。例えば、NaCl を添加した場合は、NaCl の濃度が 1% 上昇するにつれて、同圧力におけるガスハイドレートの平衡温度が 0.54°C 低下する傾向が報告されている (早野ほか, 1963)。
- 常温常圧において気体になるガス分子を水分子でできた結晶構造に格納するため、単なる気体状態と比べ遥かに高い分子密度を実現可能である。例えば、1 体積の MH に対して 164 体積 (常温常圧) のメタンガスを包接することができる。これは、現行の天然ガス輸送手段である LNG (約 600 体積) より貯蔵密度が劣るものの、MH の安定条件は LNG の気化曲線より高温・低圧側に分布することから、LNG より効率的に作成・維持できる。これは、コスト面において LNG の液化・積込プラントの建設が見合わない中小規模のガス田にとって効率的な出荷手段の一つと考えられる。すなわち、ガスハイドレートは資源だけでなく、ガスの貯蔵、輸送の手段としても有望であることが明らかである。
- 生成熱、解離熱が大きく、単位質量あたり水の 1.3 倍の潜熱がある。そのため、包接水和物スラリーを利用した冷媒や、空調システムまたは蓄熱システムの開発がなされている (JFE エンジニアリング株式会社, 2001~2003)。

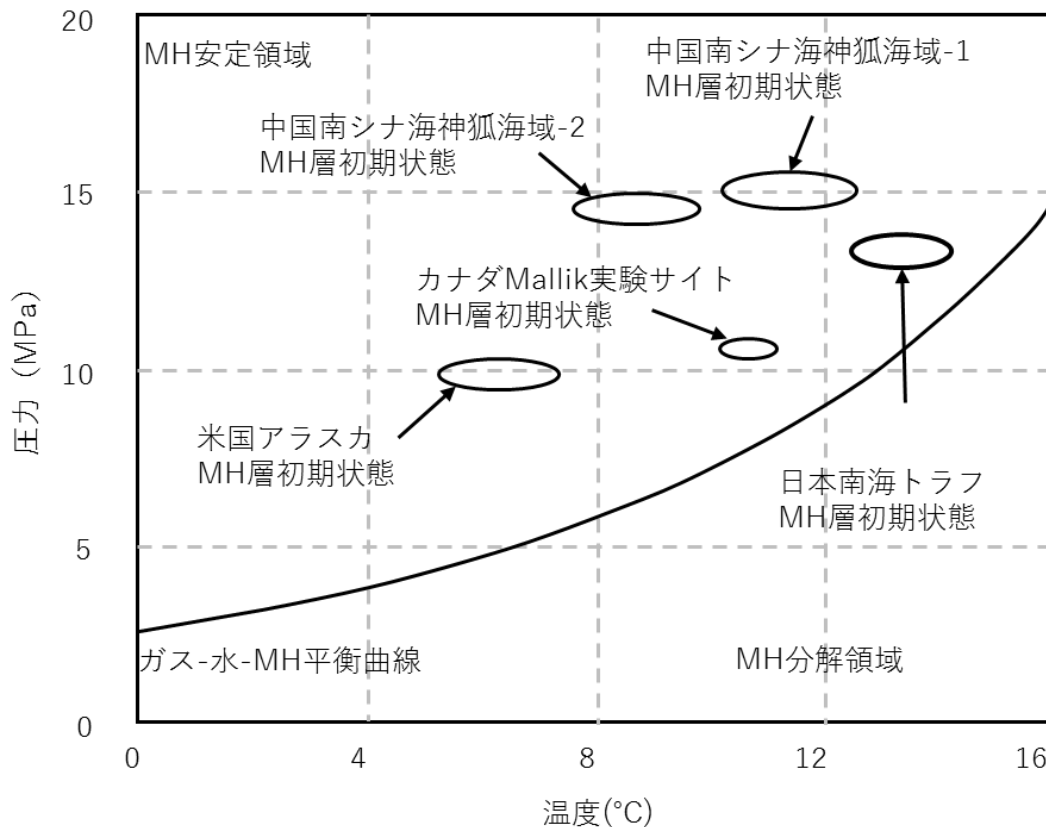


図 2-2 MH の相図および各国 MH 層の温度圧力条件
 栗原ほか (2009), 山本 (2010), MH 開発研究コンソーシアム
 (2014), および劉 (2018) を基に作成

- 包接ガス種によりガスハイドレートの平衡曲線が大きく異なり, 特定のガスに対して高い反応選択性を有することから, 混合ガスの分離やガスの精製にも活用可能である (成田, 2010).
- 氷点下 ($T < 0^{\circ}\text{C}$) の条件で分解する際に水が発生するが, その水がハイドレートの外部に氷の膜を形成するため, 内部のガスハイドレートの分解を抑制する自己保存効果がある. その結果, 安定領域からかけ離れた温度・圧力条件においても比較的長期間にわたり維持できる. この効果を利用し, より低圧で常温に近い温度条件でガスを貯蔵・輸送できるとして, 特に LNG 液化プラントの建設がコストに見合わない中小規模のガス田での有用性が期待される (井田・幸田, 2004).

2.2 メタンハイドレートの生産

本節では，メタンハイドレート（MH）の生産手法と，過去に実施した産出試験の概要と結果について説明する．

2.2.1 生産手法

MH は，賦存形態により表層型と砂層型に分類されている．日本近海には，国内消費量の約 100 年分が埋蔵され，そのうち，東部南海トラフだけでも約 14 年分の資源量が評価されている（藤井ほか，2009）ため，日本のエネルギー安全保障上極めて重要なエネルギー資源として視されている．特に，海底地層に賦存する砂層型 MH は，従来の海洋ガス田と同様に坑井を通して広い範囲のガスを回収することができ，海底揚鉦により開発する表層型 MH と比べてエネルギー収支の面において優れたことから，優先的な開発対象とされてきた（経済産業省，2001）．2022 年現在，砂層型 MH を対象とした生産手法は，主に下記の 6 種類が挙げられる．

- 加熱法
- 減圧法
- 分解促進剤（インヒビター）投入法
- 異種ガス置換法
- 固形流化法
- ハイブリッド法

2.2.1.1 加熱法

加熱法とは，MH 層に熱を与えることで貯留層の温度を上昇させ，MH の分解を促進する手法である．図 2-3 には，2022 年現在の世界主要な MH 開発実証サイトの地層温度と圧力条件を示す．このうち，日本の南海トラフの MH 層は平衡曲線より約 2℃ 温度が低く，平衡曲線からもっとも離れている米国アラスカの MH 層の場合は約 7℃ 温度低い．このような MH 層では，地層の温度を数℃ 程度上昇させれば，MH の分解を実現できる．MH 層に熱を与える手法としては，温水循環法や坑内電気加熱法のほか，深海原子炉の廃

熱を利用する手法（大坪，1995），坑内に投入した放射源による放熱を利用する手法（杉本，2005），坑井間通電法（皆川・成田，2009）および坑内発破燃焼法（杉本，2018）等も提案されている．しかし，いずれの提案でも，MHを加熱させるためには，MH層の大半を占める地層粒子，孔隙流体，及び上下地層を同時に加熱しなければならないため，エネルギー収支の観点から経済性が劣る欠点がある．ただし，坑内圧力の大幅な低下すなわち有効応力の上昇を引き起こすことがないため，孔壁および地層への力学的な刺激が弱く，出砂を引き起こすリスクが小さいという利点がある．なお，加熱法は，世界初のMHフィールド産出試験で使われた主要手法でもある（後述）．

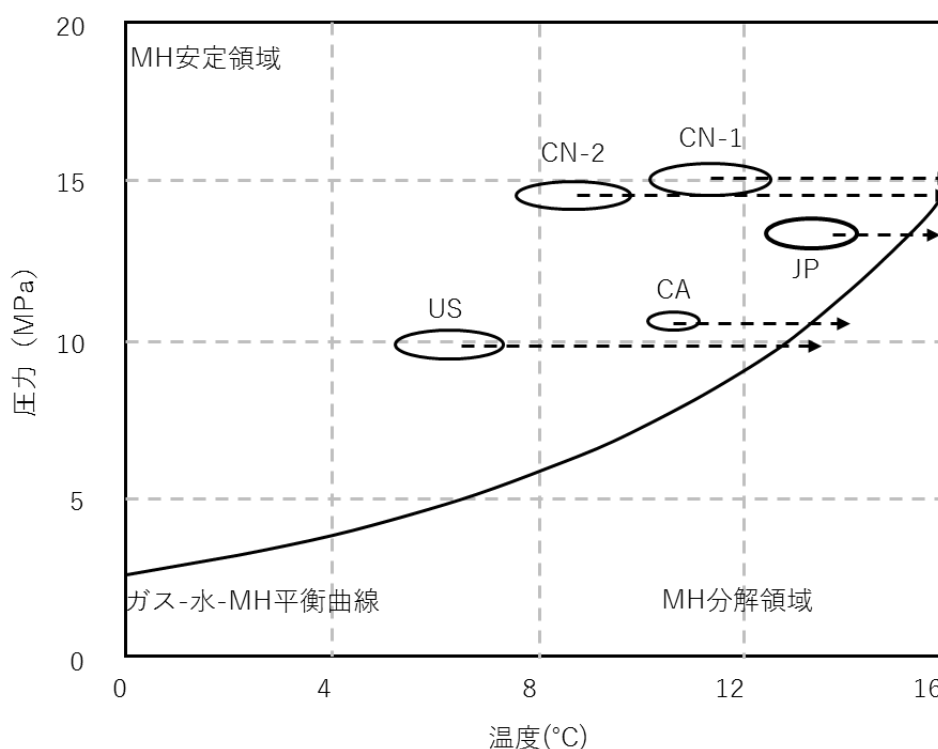


図 2-3 加熱法による MH 生産のイメージ

栗原ほか（2009），山本（2010），MH 開発研究コンソーシアム（2014），劉（2018）を基に作成

図示略称：CA-カナダ Mallik 実験サイト，CN-1-中国南シナ海神狐海域-1，CN-2-中国南シナ海神狐海域-2，JP-日本南海トラフ，US-米国アラスカ実験サイト

2.2.1.2 減圧法

減圧法は、カナダ Mallik 実験サイトで行われた第 1 回陸上産出試験において、MDT (Modular Formation Dynamics Tester : Schlumberger 社登録商標) による減圧試験を行った際にガスの発生が確認されたことを受け、提案された手法である(田中, 2009)。その仕組みは、ESP ポンプ等により坑内の水を排出し、MH 層に作用する水頭圧、すなわち MH にかかる孔隙流体の圧力を低下させ、MH を分解させるものである(図 2-4)。また、MH の分解により MH 層の浸透率が向上し、圧力の伝播及び生産フロント(生産半径)の拡大が見込められる。さらに、坑内水位を維持するために消費した電力に対して遙かに大量のガスを生産できるという予測から、エネルギー収支の面では加熱法と比べてかなり有利である(メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・長尾, 2015)。そのため、第 2 回陸上産出試験、第 1, 2 回海洋産出試験、及び中国南シナ海の神狐海域-1 で行われた産出試験においては、全て減圧法を中心に実施された(山本, 2010)(山本ほか, 2013)(メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・山本, 2017)(劉, 2018)。

また、一度に分解した MH が坑内での再生成を防ぐことと、氷の潜熱を利用し回収率を高めることを目的に、実際の産出試験では強減圧を行うことがある。例えば、南海トラフで実施された海洋産出試験では、初期圧力 13MPa から約 3MPa まで減圧した。その際のガス生産量は 120,000 m³に達したことから、加熱法に対する減圧法の優位性が明らかになった(後述)(山本ほか, 2013)。

一方、坑内減圧に伴い MH 層の孔隙圧が低下し、粒子間の有効応力が増加する。そもそも MH 層は、通常の石油・天然ガス貯留層と比べて埋蔵深度が浅いことから、十分な続成作用を受けておらず、砂粒子の固結が非常に弱い。そのうえ、孔隙に充填する MH は砂粒子を固着する役割を果たしている一方、MH の分解に伴いその固着を失ってしまい、地層の強度がさらに低下する。それに加え、減圧を維持するために水を継続的に生産するが、周辺の地層からの水の流入による内部浸食も発生する。その結果、坑井周辺の地層を構成する砂粒子は流動化になり、出砂障害を引き起こすリスクが高い。

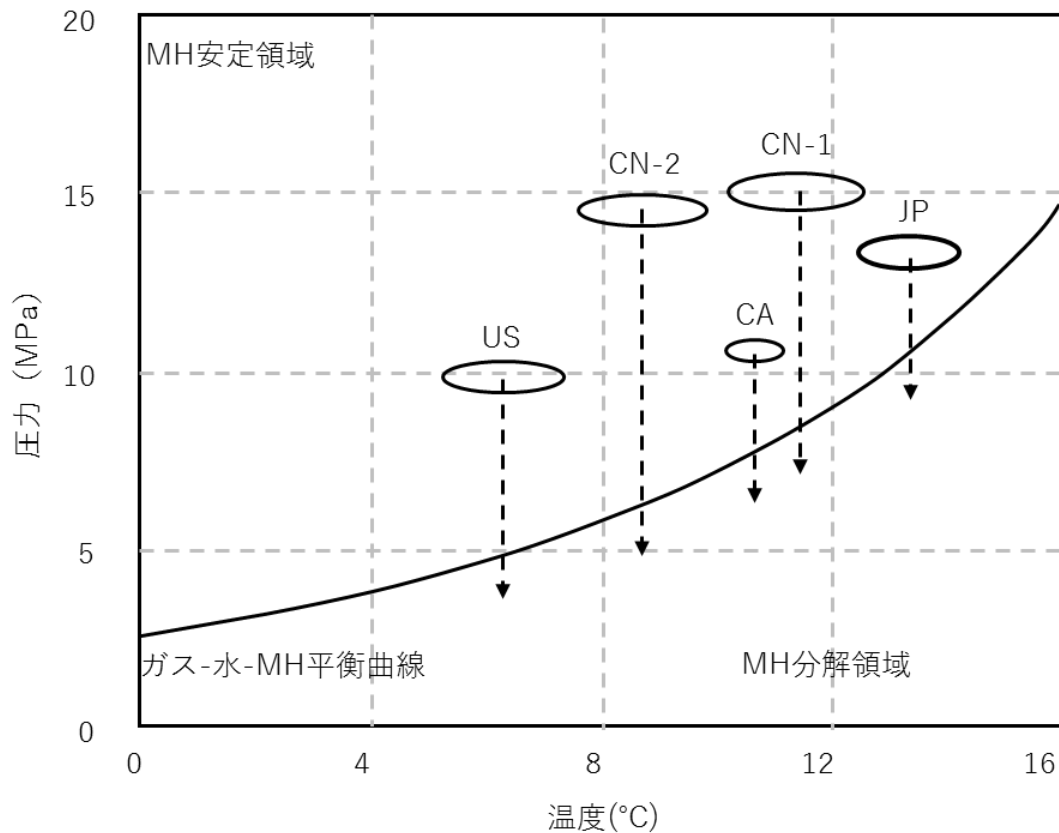


図 2-4 減圧法による MH 生産のイメージ

栗原ほか (2009), 山本 (2010), MH 開発研究コンソーシアム (2014), 劉 (2018) を基に作成

図示略称 : CA-カナダ Mallik 実験サイト, CN-1-中国南シナ海神狐海域-1, CN-2-中国南シナ海神狐海域-2, JP-日本南海トラフ, US-米国アラスカ実験サイト

2.2.1.3 分解促進剤 (インヒビター) 投入法

分解促進剤投入法は, MH の分解を促進できるインヒビター (生成阻害剤) を MH 層に投入することで, MH を分解させる生産手法である. そのイメージを図 2-5 に示す. インヒビターは, MH の生成と維持に必要な水素結合を破壊または再生成を抑制する効果があるため, MH の平衡曲線を高圧, 低温側にシフトさせることができる. また, このシフトの度合はインヒビターの濃度と関連しており, 高濃度になるほどシフト幅が大きくなる. この性質を利用し,

一定以上の濃度を有するインヒビターを MH 層に注入すれば、貯留層の温度圧力条件を変えずに MH を分解させることができる。例えば、実際の天然ガスの生産・輸送では、MH の生成による管路の閉塞を防ぐために、メタノール (CH_3OH) をインヒビターとしてパイプラインに添加することがある。しかし、この手法は、1-化学物質を使用するためにコストが高く、地面処理施設に負担が掛かること、2-インヒビターの拡散浸透や MH の分解に伴う水の生成により濃度が低下し、分解促進効果が低下してしまう欠点がある。

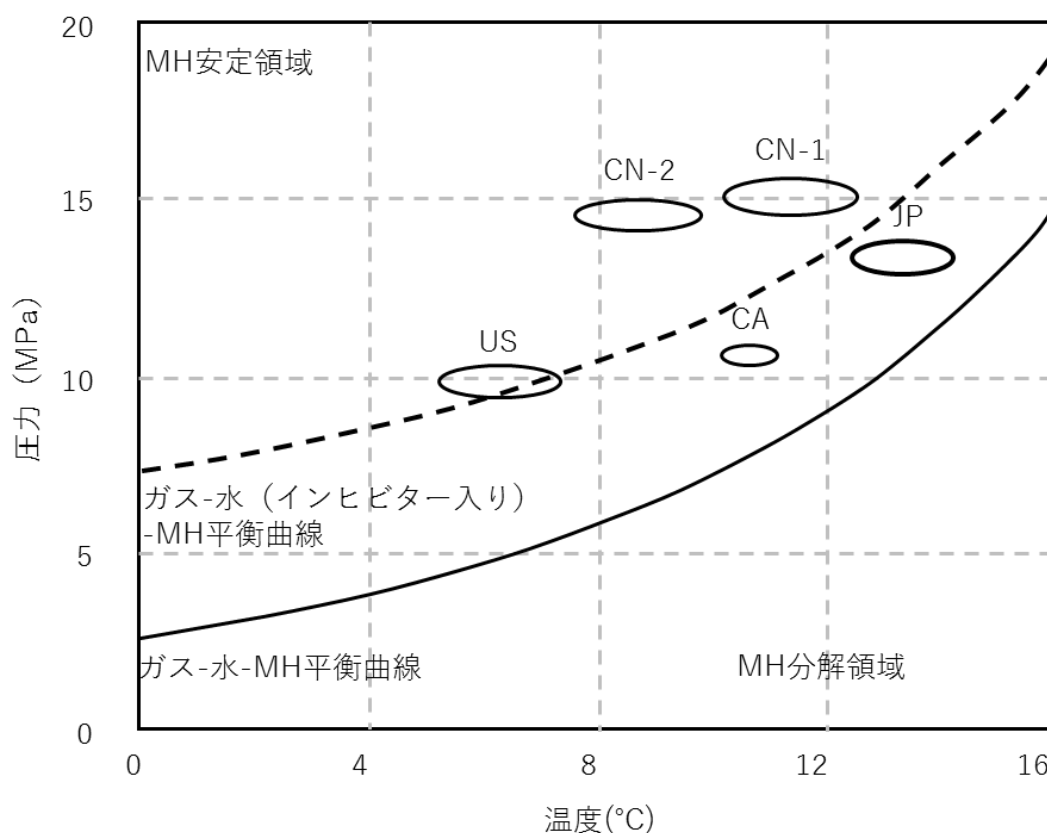


図 2-5 分解促進剤（インヒビター）投入法による MH 生産のイメージ 栗原ほか（2009），山本（2010），MH 開発研究コンソーシアム（2014），劉（2018）を基に作成

図示略称：CA-カナダ Mallik 実験サイト，CN-1-中国南シナ海神狐海域-1，CN-2-中国南シナ海神狐海域-2，JP-日本南海トラフ，US-米国アラスカ実験サイト

2.2.1.4 異種ガス圧入法

異種ガス圧入法は、窒素（ N_2 ）や二酸化炭素（ CO_2 ）などの異種ガスを MH 層に圧入し、メタンの分圧を低下させることで MH の分解を引き起こす手法である。この場合、MH 層自体の圧力を維持できるため、減圧法のように地層圧密や出砂を引き起こすリスクが低い。特に、 CO_2 ハイドレートは、MH より低圧条件で生成でき、かつその生成熱は MH の分解に必要な熱よりも上回るため、 CO_2 ハイドレートへと生成しながらメタンガスを置換・回収する手法が期待された。また、 CO_2 ハイドレートは、MH 層より以浅の地層にも生成できるため、上部砂層に CO_2 を注入し人工天盤（強化帽岩層）を作成するほか、一部分解した MH 層に CO_2 ハイドレートを生成させることで MH 層を強化することも可能である（図 2-6）。しかし、その置換率が約 20%程度と低いことから、MH の商業生産には非効率であることが明らかになった（羽田ほか，2008）。一方、窒素を用いた圧入実験の場合は、MH の分解率が約 70%に達したことが明らかになったが（羽田ほか，2009）、未だに実用化されていない。

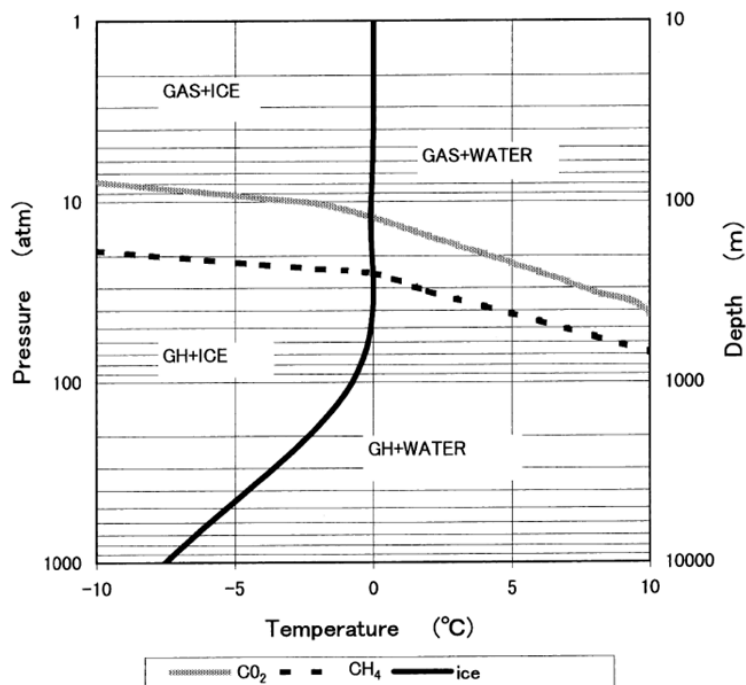


図 2-6 異種ガス（ CO_2 ）置換法による MH 生産のイメージ
（羽田ほか，2000）

2.2.1.5 固形流化法

固形流化法は、2002年頃に飛鳥建設株式会社等によって発案され、数年前から中国で大ヒットの（固態流化法とも呼ばれる）手法である。その仕組みは、1) 採掘管や遠隔操作の海底コンバイン等による高速水流（ジェット流）または機械破砕により MH 層を切削し、MH と地層粒子を混ぜた状態でスラリー状に作成し、海面へと圧送する。2) 圧送の途中では、水深が浅くなるにつれてスラリー中の MH が分解し、水とガスの分離を実現する。3) 分解ガスを船上まで回収し、水を海洋投棄する。4) 土砂を海底に埋め戻し、地層崩壊または海底地すべりを防ぐ。



図 2-7 固形流化法に使用される遠隔操作の切削圧送機械
（海底コンバイン）

（劉による撮影，2018，中国四川省）

この手法は、主に石炭や浅層オイルサンドを対象とした露天掘り

の海底バージョンとされるが、副産物である水（地層水及び MH 分解水）や土砂は環境への負荷が小さいとされる。ただし、土砂を含めるスラリーを圧送するため、機器への損耗を考慮し適用できる土砂粒径には制限があると考えられる。また、陸上のオイルサンドと同様に、経済性の観点からは表層型 MH または極浅い砂層（シルト層）MH を主な適用対象とされるため、日本の南海トラフのような埋蔵深度が比較的大きい砂層型 MH には不向きである。更に、MH の回収半径は機械破砕またはジェット切削の範囲に限られたことから、広範囲の回収は困難である。

2.2.1.6 ハイブリッド法

ハイブリッド法とは、前記 2.2.1～2.2.5 の複数を併用した生成手法である。例えば、CO₂ハイドレートの生成熱を利用した減圧法（羽田ほか、2009）、深部地熱を利用した減圧法（深部温水吸引法）（中村ほか、2009）などが挙げられる。これらの手法は、エネルギー収支が優れた減圧法を中心としているが、MH 分解時の温度低下を化学熱また地熱を用いて回復させることで、MH 層の温度すなわちガスの生産性を維持する。ただし、CO₂ハイドレートの生成時の連続性の問題や、深部地熱を利用する際のコストの問題からは、これらの手法による国内でのフィールド産出試験が実施されていない。なお、氷の生成時の潜熱を利用する強減圧法は、MH 層に熱を投入する工程を伴わないため、ここでいうハイブリッド法に分類されていない。

以上のことから、MHの産出手法の特徴を以下にまとめた(表)。
MH分解の有効性や経済性の面においては、減圧法が一番有利である一方、地層(孔壁)への力学的刺激が一番大きいことが明らかになった。

表 2-2 MH 産出手法の長所・短所一覧

| 生産手法 | 加熱法 | 減圧法 | 分解促進剤 (インヒビター) 投入法 | 異種 ガス 圧入法 | 固形 流化 法 | ハイブ リッド 法 |
|-----------------|-----|-----|--------------------------|-----------------|---------------|-----------------|
| 技術ハードル | ◎ | ◎ | ◎ | △ | △ | — |
| 現行技術・設備との互換性 | ◎ | ◎ | ◎ | ◎ | × | — |
| MH分解 有効性 | ◎ | ◎ | △ | △ | △ | — |
| 生産範囲 ・半径 | △ | ◎ | △ | △ | × | |
| 経済性 | × | ◎ | × | × | × | — |
| 地層への 力学的刺激 | ◎ | × | ○ | ○ | × | — |
| 環境負荷 | ◎ | ◎ | △ | △ | △ | — |
| フィールド 試験での実績 | ○ | ◎ | △ | ○ | △ | — |
| 関連技術の 国内保有率* | ◎ | ◎ | ◎ | ◎ | △ | — |

- ◎：良好・有効・優れる・実現しやすい
- ：比較的良好・概ね実現可能
- △：概ね実現できそうだが懸念事項が多い
- ×
- ：未評価・評価困難

※関連技術のうち、国内企業のみによって実施する可能性、すなわち海外技術への依存度を表す指標。

2.2.2 過去の産出試験

本節では、2022年現在、MHを対象とした主要な産出試験の概要、結果および問題点について説明する。主な実施場所は、北米の陸上北極圏内（図 2-8）と東アジアの大陸棚（図 2-9）にあり、いずれも砂層または泥質シルト層に賦存する孔隙充填型 MH を対象とされている。なお、米国アラスカで行われる陸上長期産出試験（2023年予定）と日本の三重県沖で行われる簡易産出試験（2023年予定）については、論文を執筆する時点において坑井掘削中のため、今回の分析・検討の対象外とする。

- カナダ・Mallik 第 1 回陸上産出試験（2002）
- カナダ・Mallik 第 2 回陸上産出試験（2007）
- 米国・アラスカ陸上産出試験（2013）
- 日本・第 1 回海洋産出試験（2013）
- 日本・第 2 回海洋産出試験（2017）
- 中国・（中国地質調査局ほか）・海洋産出試験（2017）
- 中国・（中国海洋石油公司）・海洋産出試験（2017）

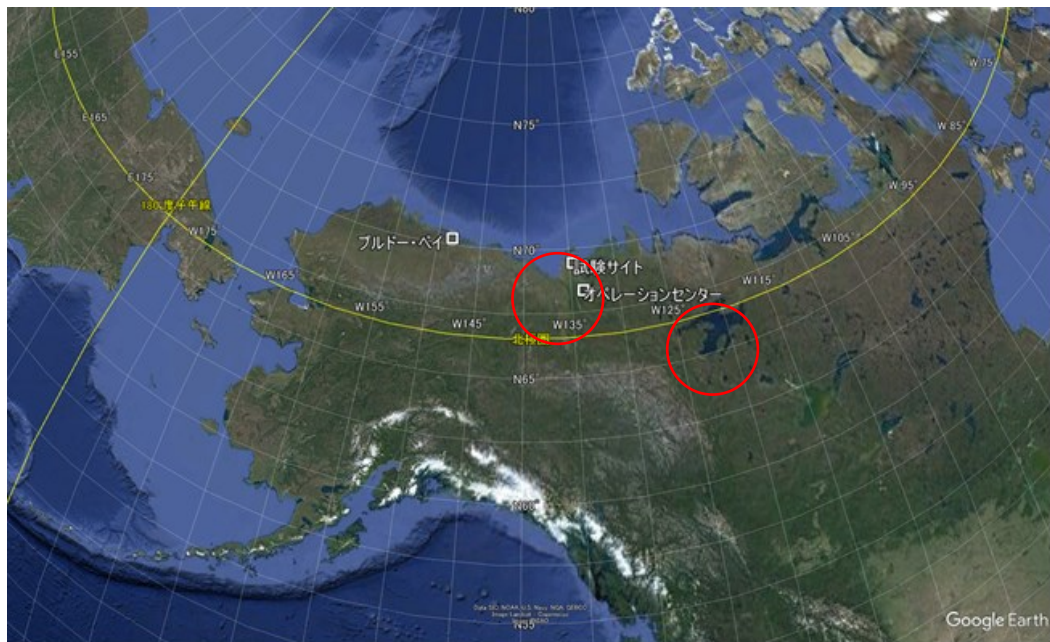


図 2-8 北米の陸上産出試験の現場位置（赤丸）
 (安田, 2008), (独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構, 2012) を基に, Google Earth を用いて作成

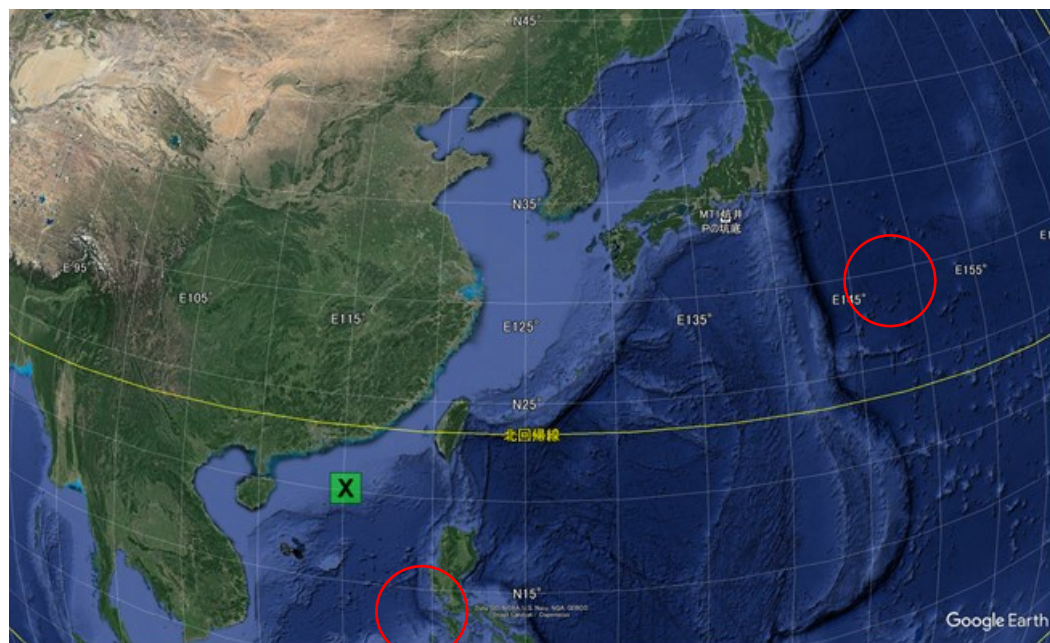


図 2-9 東アジアの海洋産出試験の現場位置（赤丸）
 山本ほか (2013), MH 資源開発研究コンソーシアム・山本晃司 (2017), 劉 (2018) を基に, Google Earth を用いて作成

2.2.2.1 カナダ・Mallik 第 1 回陸上産出試験 (2002)

2002 年，日本，米国，カナダ，ドイツ，インドの 5 か国合同研究チームにより，カナダ北部の Mallik 実験サイトにおいて史上初の MH 産出試験が実施された．同試験では，加熱法（温水循環法）を主要手法として，5 日間で約 470 m³ のガスを生産した．また，下部 MH 層の 6 か所において MDT (Modular Formation Dynamics Tester: Schlumberger 社登録商標) による検層を実施し，MH 層に十分な浸透率を有することが確認された．さらに，減圧時にガスの発生が確認されたことから，減圧法の適用可能性が示唆された (田中，2009)．

2.2.2.2 カナダ・Mallik 第 2 回陸上産出試験 (2007～2008)

2007 年から 2008 年にかけて，日本・カナダ合同研究チームにより，Mallik 実験サイトにおいて減圧法を用いて第 2 回陸上産出試験を実施した．2007 年の第 1 冬試験では，12.5 時間に約 830 m³ のガスを産出し，史上初の減圧法による MH 生産を実現した．しかし，坑井内への砂の流入により，60 時間程度で試験の中止を余儀なくされた．また，その出砂の量は 2.5 m³ にも及び，数十メートルの坑井区間を埋め尽くすほどであった (安田ほか，2007)．その後の第 2 冬の試験では，坑内に出砂対策のためのスクリーンの設置などの工夫をした上で，11MPa であった坑内圧力を 4MPa まで強減圧を行った．その結果，6 日間連続で約 13,000 m³ のガスが生産され，減圧法の有望性が確認された (安田，2008)．

2.2.2.3 米国・アラスカ陸上産出試験 (2012)

2012 年，日本の JOGMEC および米 Conoco-Phillips 社の合同チームにより，米国アラスカの陸上鉦区において CO₂ 置換法を主要手法とした産出試験が行われた．試験では，約 13 日間に CO₂ を圧入し，メタンガスの生産を確認した．その後，減圧法に切り替え，通算 30 日間にメタンガスを生産した (独立行政法人石油天然ガス・金属鉦物資源機構，2012)．

2.2.2.4 日本・第1回海洋産出試験（2013）

2013年、日本南海トラフの第二渥美海丘において世界初のMH海洋産出試験が実施された。試験では、減圧法を主要生産手法とし、ESPポンプにより12MPaであった坑内圧力を4MPaまで低下させた（ポンプ吸水口での圧力）。また、出砂対策として、在来型の石油・ガス生産井において実績があるグラベルパックを設置した。その結果、6日間に約119,000 m³のガスが産出し、日産2万 m³のガスレートを達成した。しかし、6日目からは再び砂が坑内へと流出し、ポンプなどの坑内機器に損傷を与えたほか、船上処理施設の処理能力をも超えたため、試験を中止せざるを得なかった。従って、グラベルパックのみを用いた出砂対策は不十分であることが明らかになった（山本ほか、2013）。

2.2.2.5 日本・第2回海洋産出試験（2017）

第1回海洋産出試験の成果と教訓を踏めて、2017年に日本南海トラフにおいて第2回の海洋産出試験が実施された。試験では、生産井2本（P3→P2）が掘削され、坑内機器の構造や配置の改良を行うことで、水・ガス分離の性能向上や断線によるデータ欠測の回避などを図った。また、出砂対策としては、従来のグラベルパック・スクリーンのほかに、多孔質の形状記憶ポリマー「GeoFORM™」（米国 Baker Hughes 社）の2タイプ（坑内膨張型・事前膨張型）を用いた出砂対策装置も投入された。さらに、出砂リスクが高いと判断された地層をパッカーにより隔離する工夫もなされた（メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・山本晃司、2017）。

しかし、P3井の生産では、減圧開始から僅か2日後に出砂が確認され、9日後に出砂が顕著になり、13日後には出砂対処不能で減圧中止になった。砂の流入箇所は坑井（出砂対策装置）の底部と見られ、砂が流入した原因が1) 底部の逆止弁の機能不全、または2) 強減圧による出砂対策装置の破損とされた。一方、その後のP2井での試験では、孔底へのプラグの設置や減圧度合いの低減などの対策を講じたために出砂が確認できなかったものの、水産出レートの過大により減圧を維持できず、管内にMHの再生成が複数回に起きた。その原因は、1) 上部帯水層からの水産出、2) MH層の不

均質による水の流路（ワームホール）の生成，または 3) 坑径拡大によるパッカーまたは形状記憶ポリマーの機能不全で地層間の導通が起きた，とされてきた（メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・山本晃司，2017）．特に 3 は，固結が弱い砂層で起こりやすい現象であり，1 の影響を拡大させる作用もある．また 2 は，固結が弱い MH 層で起きた場合は内部浸食によるワームホールの拡大が生じやすく，通常の砂岩層と比べ出水・出砂のリスクが高いと考えられる．

2.2.2.6 中国（中国地質調査局ほか）・海洋産出試験（2017）

日本の第 2 回海洋産出試験とほぼ同じ時期に，中国地質調査局等からなる研究チームにより，中国南シナ海の神狐海域において減圧法による MH の産出試験を実施した．対象 MH 層は，深度条件は日本の南海トラフに近いとされるが，粒径分布が比較的細く，中心粒径が十数 μm の泥質シルト層に分類される．このような地層は浸透性が低く，また MH が分解後の骨格構造が破壊されるため，地層粒子を MH と一緒に生産する方式が採用された．その結果，約 60 日間に $309,000\text{m}^3$ のガスを産出し，最大日産 $35,000\text{m}^3$ を実現できたが，砂の産出も避けられなかった（劉，2018）．

2.2.2.7 中国（西南石油大学・中国海洋石油）・海洋産出試験（2017）

中国地質調査局等による産出試験とは同時に，西南石油大学・中国海洋石油の研究試験チームは，改造された物理探査船 HYSY708 を用いて南シナ海荔湾鉤区において固形流化法を用いた産出試験を実施した．試験は僅か 1 日を継続し，ガスの産出量が 81m^3 にとどまった．荔湾鉤区の MH 層は地層粒子の含有量が少なく，表層型 MH に近い性質を有することから，減圧法よりも固化流化法の方が有効とされているが，減圧法を用いた砂層・シルト層での生産量には及ばなかった．（劉，2018）

以上のことから、孔隙充填型（砂層・シルト層型）MHを対象とした場合は、減圧法が多少出砂を起こすものの最も効率的なMH生産手法であることが分かった。また、MH層の出砂や孔壁崩壊といった力学的問題を解決できれば、MHの安定生産並びに日本のエネルギー自給率の大幅な向上を実現できると期待される。

表 2-3 過去の MH 産出試験一覧（執筆時点）

（安田，2008），（山本・佐伯，2009），（独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構，2012），（山本ほか，2013），（メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・山本晃司，2017），（劉，2018）*₁を基に作成

| 時期 | 2002 | 2007～ 2008 | 2012 | 2013 | 2017 | 2017 | 2017 |
|---------------------------|------------------|---------------|--|----------------------------|---------------------------------|--------------|------------------|
| 実施場所 | カナダ Mallik 実験サイト | | 米国 アラスカ 陸上鉱区 | 日本南海トラフ 第二渥美海丘 | | 中国南シナ海* 2 | |
| | | | | | | 神狐 海域 | 荔湾 鉱区 |
| 主要実施機関 | 日米加 独印の 合同 チーム | 日加 合同 チーム | JOGMEC* ₃ 米 Conoco-Phillips 社 | JOGMEC * ₃ , ほか | JOGMEC * ₃ , ほか | 中国地質 調査局 ・ほか | 西南 石油 大, 中国 海油 |
| MH 層 種類 | 砂層型 | | | | | 泥質 シルト層型 | |
| 生産手法 | 温水 循環法 加熱法 | <u>減圧法</u> | CO ₂ 置換法 / <u>減圧法</u> | <u>減圧法（強減圧法）</u> | | | 固形 流化法 |
| 継続 生産 期間 | 5 日間 | 6 日間 | 30 日間 | 6 日間 | 36 日間 | 60 日間 | 1 日間 |
| 累積 ガス 生産 量 m ³ | 470 | 13,000 | | 119,000 | 263,437 | 309,000 | 81* ₄ |
| 平均 日産 m ³ | 90 | 2,200 | | 20,000 | P3 : 3,000 P2 : 10,000 | 5,150 | 81 |
| 出砂 有無 | なし | <u>あり</u> | なし | <u>あり</u> | | 意図的に生産 | |

※1：学内出張報告，以下同様．

※2：詳細な座標は未公表．ただし，中国地質調査局および中国海洋石油会社の両実験サイトは，お互いに目視できる距離にあったと言われる（関係者への聞き込み調査による）．

※3：JOGMEC：独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構（当時）

※4：一説は 101m^3 （関係者への聞き込み調査による）

2.3 地盤改良及び地盤改良材

本節では，土木・建設分野における地盤改良手法及びその改良材について説明する．

2.3.1 地盤改良とは

地盤改良は，土木工学（地盤工学分野）に属する技術手法であり，主に軟弱地盤の強化，液状化の防止，斜面の安定化，またはダム基礎やトンネル切羽の岩盤強化と止水を目的に行われる（図 2-10）．その実施対象や目的，工法からは，以下のように分類できる．



図 2-10 低層住宅建設のための地盤改良工事一例
（富山県富山市，筆者が修士学生時代に所属した研究室の助教の
実家の再建築現場）

（劉，2015）

表 2-4 地盤改良の目的と工法一覧

| 目的 | 工法 | 施工対象 |
|-----------------|-------------------------------|-----------|
| 地盤の強化 支持力の向上 | 浅層混合工法 | 低層住宅，工場 |
| | 杭工法 | 高層ビル・タワマン |
| 液状化防止 | 深層混合工法， サンドコンパクション工法 | 道路，空港，埋立地 |
| | <u>地盤注入法</u> | 既存建物の基礎強化 |
| 崩壊防止 | 擁壁，グラウンドアンカー， <u>地盤注入法</u> | 斜面，法面，盛土 |
| 岩盤強化 止水 | <u>地盤注入法</u> | ダム，トンネル |

建物や構造物の建設前に行う地盤改良では，対象地盤が比較的浅く，また現場へのアクセスが比較的容易であることから，地面に大型施工機械を展開可能な浅層混合工法や杭工法等が採用されることが多い．一方，既に供用中の構造物の場合は，その機能を維持しながら基礎地盤を強化するニーズがあるため，地表に大きな工事機械を置かずに施工できる手法が求められる．また，ダムの基礎岩盤の強化や止水，およびトンネルの建設時における湧水防止や崩壊対策などでは，コストや工事スペースの制約上，最小限の掘孔量から最大限の地盤改良効果を得られる手法が求められる．この際に用いられるのは，地盤注入法である．

2.3.2 地盤注入法とは

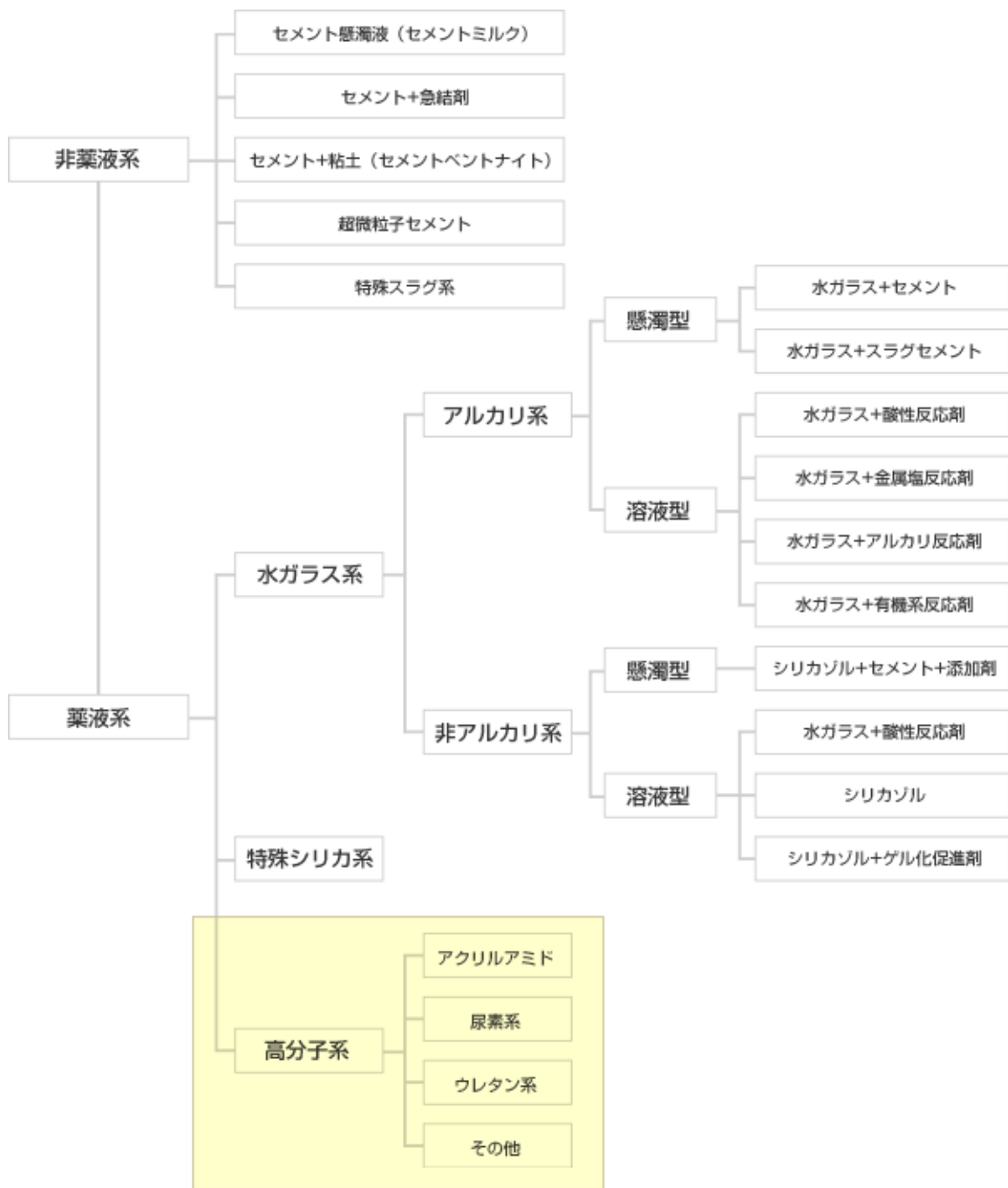
地盤注入法（英：Grout または Grouting，グラウト工法とも呼ばれる）とは，地盤を構成する土砂粒子を人工的に固結できる薬剤を地中に注入し，対象地盤の強度を向上させる手法である．また，土砂粒子の孔隙を薬剤の固結物により充填することで，地盤の浸透率の低下，すなわち地盤の止水効果を高めることも可能である．このような効果を有する薬剤は地盤改良材または地盤注入材と呼ばれる．地盤注入では，ボーリング孔内に降ろしたチュービングと注入ツールを通じて薬剤を対象地層に圧入するが，その施工形態は，石油・天然ガスの生産における注入井とかなり類似している．また，その注入ツールの構造や施工方式により，地盤注入法は以下の工法

も挙げられる（）。なお，施工会社により異なる名称を用いることも有る。

- 二重管ストレーナ工法（単相式）
- 二重管ストレーナ工法（複相式）
- ダブルパッカー工法
- 浸透注入工法
- 高圧ジェット

2.3.3 地盤改良材の種類と特性

薬液注入に使用する地盤改良材は，1) ボーリング孔を通して地中に圧送でき，かつ土砂粒子の隙間に注入できること，2) 土砂粒子を人工的に固結でき，地盤の強度を向上させること，また好適には，3) 土砂の孔隙を充填することで，地盤の止水性を向上させる，といった条件を満たす物質・材料から選ばれる。図 2-11 には，土木業界大手であるライト工業株式会社による地盤注入材の一般的な分類を示す。



「暫定指針」により使用できない。

図 2-11 地盤改良材（注入材）の一般的な分類
（ライト工業株式会社）

非薬液系改良材は、主にセメントや特殊スラグを主剤とするもので、セメント系改良材とも呼ばれる。その特徴は、1) 比較的高い固結強度を実現でき、7号硅砂を用いた円柱型供試体では一軸圧縮強度が4MPa以上を達成できることが殆ど、2) セメントの水和反応を利用するため、水和反応の進行が遅い低温条件での強度発現が遅く、0℃以下では強度の発現を期待できない、3) セメント水和物の成長形態により孔隙に一部の隙間が残るため、固化体にある程度の透水性を持つ、4) セメントの健全性を保つ必要があるため、酸性地盤での適用が難しい、5) 主剤であるセメント粒子の粒径の関係上、注入可能な孔隙サイズ、すなわち対象地盤の適用可能な粒径限界がある、6) 静置または低速流動状態に置くと凝集し始まる、などが挙げられる。

一方、薬液系改良材には、水ガラス系、特殊シリカ系、高分子系がある。そのうち、水ガラス系は最も広く使われ、添加剤を加えることで様々な性質を持たせるカスタム性も豊富である。その特徴は、1) セメント系改良材と比べ固結強度が比較的低く、一軸圧縮強度が数百kPa～1MPaの製品が多い、2) 添加剤を加えることでゲルタイムを広範囲で調整できる、3) 溶液型であるため、粘土やシルトなどの低浸透性地盤にも適用可能、4) 固結物による地盤孔隙への充填性が良く、改良体の止水性が高い（浸透率が低い）、5) アルカリ性地盤や経年によりゲルの溶解または収縮が発生し、改良体に劣化が生じることがある、などが挙げられる。なお、薬液系改良材には、尿素系やウレタン系といった有機系改良材もあるが、「薬液注入工法による建設工事の施工に関する暫定指針」により日本国内での使用が困難である（建設省、1974）。

他には、微生物の代謝による炭酸カルシウムの析出を利用した土砂固化手法も研究されているが、現場での運用実績が少ないこと、また土砂を固結する炭酸カルシウムは薬剤由来ではないことから、ここでいう地盤改良材には分類されていない。

2.4 まとめ

本章では，1) MH の性質，2) MH を資源としての生産（回収）方法や過去の産出試験とその問題点，3) 土木分野での地盤改良手法やその改良材について説明した．そのうち，砂層型 MH は，生成条件により海底地層または永久凍土層の下に分布しており，その産出方法として減圧法が有効であることが過去の研究や実証試験により明らかになった．一方，その副作用として，MH 層からの出砂現象が発生し，坑内及び船上設備にダメージを与え，生産の中止を余儀なくされた．すなわち，MH の長期安定生産を実現させるためには，坑井近傍での地層崩壊や出砂障害を防げなければならない．

一方，土木工学では，地盤を構成する土砂粒子の隙間に地盤改良材を注入し，粒子を人工的に固結することで地盤の強度や止水性を向上させる地盤注入手法が広く応用されている．この手法は，ボーリング孔（坑井）から薬液を地中に注入する実施形態や，対象地層の強度を大幅に向上させる効果から，MH 層の改良（安定化）に活用する可能性が考えられる．一方，この手法は，地盤の止水性の向上，すなわち対象地層の浸透性を大幅に低下させる効果があるが，これは流体資源の生産にとって極めて大きな逆効果であるため，慎重に検討する必要がある．

第 3 章 先行研究

本章では，従来の石油・天然ガス生産における出砂対策手法と，メタンハイドレート生産のために提案された出砂対策手法について説明する．

- 従来の出砂対策について
- メタンハイドレート層を対象とした安定化対策

3.1 従来の出砂対策について

石油・天然ガスの開発、生産では、古くから生産井からの出砂と闘ってきた。特に、生産年数が経った坑井や、埋蔵深度が浅い貯留層からの出砂が発生しやすく、様々な対策手法が開発されている。また、水資源の採取や環境調査のための水井においても、土砂粒子の産出を防ぐための対策を講じることが多い。本節では、こうした既存の出砂対策について説明する。

3.1.1 スクリーン法

スクリーン法は、最も古い出砂対策の一つである。その仕組みは、坑井の対象深度（通常は油ガスの貯留層または水井の帯水層）にスクリーンを設置し、砂の流出を遮断するものである。また、スクリーン単体では強度が限られることから、スクリーンの内部に補強用のストレーナ管を設けるケースが多い。さらに、集積した砂粒子によるスクリーンの目詰まりを想定し、台形または三角形断面を持つワイヤーで作られたジョンソンスクリーンを使用し、逆洗により粒子を離脱させるなどの工夫をされるケースも見られる。この方式は、出砂対策の中で最も手頃であり、油ガス井のほか、環境調査などの水井にも広く使われる。しかし、ESP(Electric Submersible Pump)が設置された場合は、その電力供給ケーブルによる誘導電流から、金属製のスクリーンに激しい電気化学腐食を引き起こすケースが多く見られる。

3.1.2 グラベル充填法

グラベル充填法は、坑井のパフォーレーション区間およびその前後区間において、ケーシングとスクリーンからなる環状空間（アニュラス）に一定の粒径分布を有するグラベル(礫)を充填することで、流体を透過させながらも砂粒子の流出を遮断できる多孔質層を作成する方法である。この手法では、主に対象地層の砂の粒径分布を基にグラベルの粒径を決定する。例えば、MH層を対象とする場合は、グラベルの中心粒径をMH層の砂粒子の4～5倍に設定する場合に砂の流出を有効に防げるといった実験データがある（鈴木・桑

野， 2016).

3.1.3 グラベルパック・スクリーン法

グラベルパック・スクリーン法は，上記スクリーン法にグラベル充填法を組み合わせたもので，スクリーンの内部補強層にグラベルパックを取り付けたものである．また，グラベルパックは，一定の粒径を有する金属粒子を焼結した多孔質材料であり，高い強度を有することが特徴である．その強度は，MH 生産時の強減圧にも耐えられることから，第 1 回海洋産出試験の生産井に使用された．しかし，生産開始から 6 日目には出砂が確認され，その出砂防止効果が不十分であったことが明らかになった．

3.1.4 記憶性多孔質ポリマー法

多孔質記憶ポリマー法は，米国 Baker Hughes 社が開発した記憶性多孔質樹脂「GeoFORM™」を用いて，坑井の生産区間において流体透過性を有する濾過層を作成する出砂対策手法である（図 3-1）．施工では，発泡前の「GeoFORM™」をスクリーンの外周に取り付け，発泡剤を用いて「GeoFORM™」を膨張させる．その際，「GeoFORM™」の内部に大量の気泡が発生し，気泡同士が繋ぎ合うことで多孔質の流動経路が形成する．また，その設置方式からは，1) 膨張させた後に坑内に下ろす「事前膨張方式」と，2) 坑内に下ろした後に膨張させる「坑内膨張方式」がある．前者は，膨張作業を地表で行うため，記憶性ポリマーを十分に膨張させることができるが，孔壁との密接性が不十分な可能性が高い．一方，後者は坑内で膨張するため，「GeoFORM™」の外周と坑壁との密着性が良く，削井段階などで生じた坑径拡大にも対応性が良いという利点がある．さらに，「GeoFORM™」は，MH 層生産時の強減圧に耐えられる強度を有することを室内試験により確認されたことから，MH 生産のための有力な出砂対策と視された．

しかし，第 2 回海洋産出試験の出砂対策として本手法の 2 方式とも採用されたが，設置された生産井 2 本とも出砂または出水現象が発生した．その原因は，坑底の逆止弁に何らかの不具合が生じたため，帯水層または MH 層からの水と砂粒子が坑底から大量に

流れ込んだとの見方が示された(メタンハイドレート資源開発研究
コンソーシアム・山本, 2017)。これは、「GeoFORM™」自身の破
壊に起因した現象ではないものの、坑底より浅い位置に存在する
MH 層の砂粒子が坑底から産出したこと自体が、1) MH 層の砂粒
子に流動化が生じたこと、2) 地層と「GeoFORM™」との間が完全
に密着しておらず、流動化した砂粒子が坑底の逆止弁まで到達する
流動経路が存在したこと、および 3) 「GeoFORM™」の本体または
周辺部品に少しの破損または開放箇所が生じると、流動化した砂が
そこから流れ込み、装置全体の出砂防止効果が大幅に低下してしま
うリスクを示唆した。また、逆止弁といった周辺部品が健全性を保
っていたとしても、「GeoFORM™」の外周と地層との間に密着不良
の箇所が生じると、帯水層への導通やそれによる異常出水が生じる
可能性が残る。すなわち、砂の流動化が生じやすい未固結の MH 層
においては、「GeoFORM™」だけで出砂・出水を防止する効果には
不確実性を伴う一方、砂の流動化を抑えることができれば、このよ
うな不確実性を大幅に低減させることができると考えられる。



図 3-1 独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構が保有する
グラベルパック・スクリーン・GeoFORM™の実物切断モデル
(劉による撮影)

3.1.5 防砂剤注入法

「防砂剤」は中国語由来であり，中国で広く使われる出砂対策手法の1つである．その仕組みは，坑井を通して対象地層に砂粒子を人工的に固着できる防砂剤を注入することで，坑井周辺の地層の浸透率をある程度維持しながらも地層を強化するものである．例えば，筆者の地元である勝利油田（中国山東省，1964年より操業開始）では，老朽化した油井の延命措置として，有機系の防砂剤を用いた防砂作業（日本では坑井改修に該当する）を行うことが多い．同油田の操業を行う Sinopec 社によると，これらの延命油井は2年以内に同一箇所での出砂がほとんど発生しないことから，すでに確立されてかつ十分な実績がある技術であると考えられる．一方，防砂剤の固結には数十℃ないし100℃以上の地層温度が必要とされるため，この手法の適用深度には限界がある．例えば，近年開発された低温型の防砂剤は50℃に固結できるとされるが，その場合の対応深度はおよそ1000m以深と推定される．一方，MH層の温度は概ね数℃～十数℃であることから，この手法を直接にMH層に適用することが困難である．

3.1.6 RCSによる人工坑壁造成法

RCSによる人工坑壁造成法は，前記の防砂剤注入法の延長として，勝利油田で初めて応用された手法である．その仕組みは，有機系防砂剤またはそれに類する接着剤でコーディングされた砂またはセラミック粒子を坑井に送り込み，出砂により生じた地層空洞に充填させ，そこに浸透率と強度を両立した人工坑壁（人工砂岩）を造成する手法である．同手法により作成した人工砂岩は，絶対浸透率が1000mD以上，一軸圧縮強度が5～10MPaのものが多く，坑井周辺の空洞を充填することでケーシングの変形を抑える役割も果たせる．そのため，同手法は出砂によりケーシングの外周に既に空洞が発生した老朽化油井を対象に実施することが多い．しかし，防砂剤注入法と同様に，RCSのコーディング層の固化には温度条件があり，最新の超低温型でも20℃以上が必要であること（李ほか，2016）から，地層温度が低いMH層にはそのまま適用するこ

とができない。

以上のことから，従来の石油・天然ガス坑井を対象とした出砂対策手法を表 3-1 にまとめる。

表 3-1 従来の石油・天然ガス坑井を対象とした出砂対策手法

| 手法 | 適用温度 | 長所 | 短所 |
|-------------------------|----------------|--|--|
| スクリーン法 | 任意 | 施工容易で 低コスト | ESP による電蝕に弱い |
| グラベル 充填法* | 任意 | 施工容易で 低コスト | MH 層での出砂防止効果が不十分 |
| グラベルパ ック・スク リーン法* | 任意 | 強度が高く， 強減圧に対応可能 | MH 層での出砂防止効果が不十分，高コスト |
| 記憶ポリマ ー法* | 発泡 温度 以上 | 坑壁との密着性が良く， 径拡大にもある程度対応可能 | 周辺部品の不具合により MH 層での出砂防止効果 に不確実性がある， 高コスト |
| 防砂剤注入法 | 50℃ 以上 | 坑内に機器類の設置がなく， 坑内スペースが広い | 低温での適用は困難， 経年劣化がある |
| 人工坑壁 造成法 | 20℃ 以上 | 坑内に機器類の設置がなく， 坑内スペースが広い 既に空洞が発生した 老朽油井を補強可能 | 低温での適用は困難， 経年劣化がある |

※：MH 産出試験で実際に使用した手法。

3.2 メタンハイドレート層を対象とした安定化対策

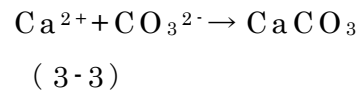
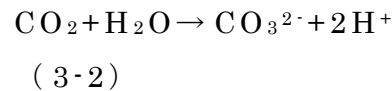
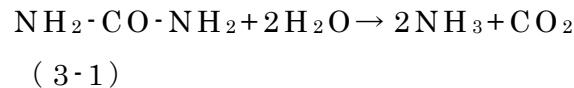
本節では，MH層を対象とする既存の提案手法について説明する．

3.2.1 微生物活動による生成物を利用した土砂固化法

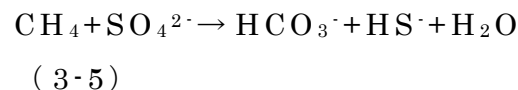
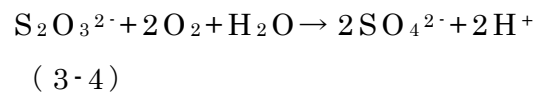
本手法は，独立行政法人石油・天然ガス金属鉱物資源機構（JOGMEC），富山県立大学の研究チームにより共同で提案された手法である（山本ほか，2017）．そのイメージを図 3-2 に示す．MH層まで作成された坑井には，尿素等の薬液を注入する注入チュービングと，水やガスを生産する回収チュービングが設けられ，両チュービングとケーシングとの間のアニュラスに圧力調整装置を設ける．生産は主に以下の 3 工程により行う．

- （1）炭酸カルシウムの析出を促進させるための二酸化炭素又は硫酸イオンを生成する微生物が存在する海底地盤に，その微生物の活動に用いられる組成物（栄養塩等）を生産井を通して圧入する圧入工程．
- （2）前記組成物を圧入した後に前記生産井内を減圧する減圧工程．
- （3）前記生産井内を減圧した状態で炭化水素を回収する回収工程．

- (1) 尿素を加水分解するウレアーゼ活性を有する微生物を使用し，その活動に必要な組成物として尿素を海底地盤に圧入し，そこに二酸化炭素を生成させる実施形態．二酸化炭素は，地層水に溶かし炭酸イオンを形成し，さらに地層水に含まれたまたは人工注入したカルシウムイオンと反応し，炭酸カルシウムを析出する．そのメカニズムを式 (3-1) ～式 (3-3) に示す．



- (2) 硫酸イオンを生成する微生物を使用し，その活動に必要な組成物として，チオ硫酸塩を海底地盤に圧入する実施形態．その一例として，チオ硫酸塩が酸化した後に加水分解する硫黄酸化細菌を用いて硫酸イオンを作成し，さらに MH 層に存在するメタンと反応させることで炭酸イオンを生成させる．その上，地層水に含まれたまたは人工注入したカルシウムイオンと反応し，炭酸カルシウムを析出する．そのメカニズムを式 (3-4) ～式 (3-5) に示す．



- (3) 地盤固化および MH 生産の段階，または海底地盤の微生物環境に応じ，上記の効果を有する微生物を複数組み合わせる実施形態．例えば，MH 生産前の段階ではチオ硫酸塩が酸化した後に加水分解する微生物を使用し，MH 生産が進んだ後には尿素を加水分解するウレアーゼ活性

を有する微生物を使用することで、生産性と固化効果の最大化を図る。また、必要な微生物を人工培養し、海底地盤に投入しても良い。

上記のプロセスにより析出された炭酸カルシウムは、砂粒子同士を固結する効果を有することから、海底地盤の強度を向上させ、MH 生産時の出砂防止策として有望であるとされる（図 3-3）。なお、同手法は、2021年に日米両国で特許を取得した。

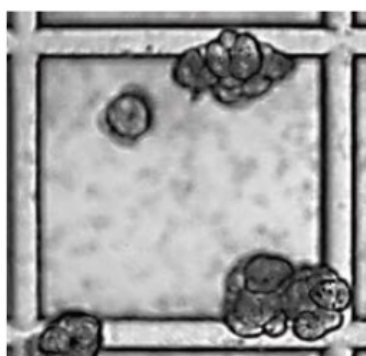


図1 *S.newyorkensis*（南海トラフ海域で取得された微生物）の作った結晶鉱物

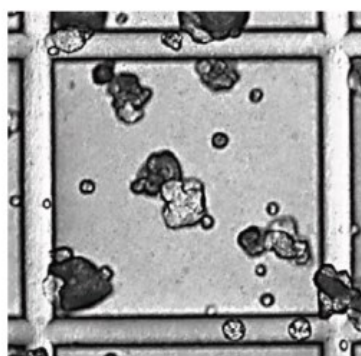
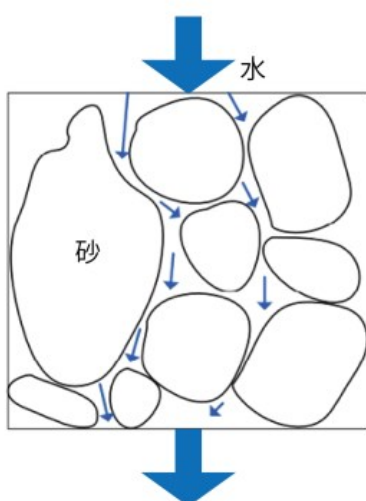
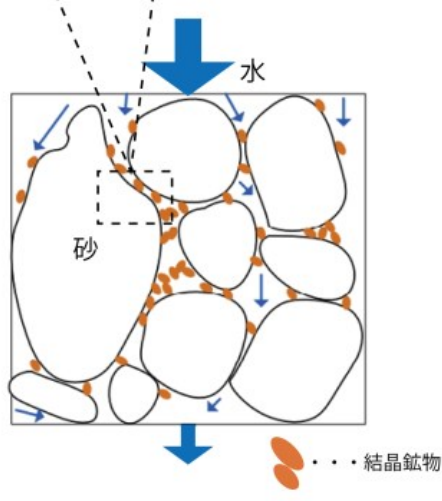


図2 *S.pasteurii*（建設の地盤改良で用いられる微生物）の作った結晶鉱物



メタンハイドレートの分解により砂の「かみ合わせ（骨格構造）」が弱くなるとともに、浸透水量が増加



固化能力を持つ微生物の栄養、固化成分を浸透させ、砂の間隙中に結晶鉱物を析出させ強度増進（出砂抑制）効果を得る

図 3-3 微生物析出物による砂粒子固化のイメージ

（JOGMEC，2021）

同手法は、土木分野における微生物固化手法（MICP）を MH 層の安定化に用いられたものである。MICP は、洋上プラットフォームの建設のための海底基礎の造成においても実績がある（Anders Palmén et al. 2014）。しかし、同手法による固結砂は強度が低く、栄養塩を 48 時間間隔で 5 回通水した場合の三軸圧縮強度（CD 試験、有効拘束圧 = 100kPa）が 400kPa に達さず（畠ほか，2017）、MH の生産における強減圧に耐えられるかは不明である。また、通水回数を増やし、炭酸カルシウムの析出率を上げることで圧縮強度を向上させることが可能とされているが、工期の延長によるコストの増大などの欠点がある。すなわち、この手法を直ちに MH 層の安定化に応用することが困難であると考えられる。

3.2.2 発泡グラウトによる海底未成岩メタンハイドレート層の改造方法

本手法は、（中国）吉林大学の研究チームにより提案された手法である。同手法は、海洋泥質粉砂型（海洋粘土混じりシルト型）MH の貯留層を対象に、発泡モルタルを地層の破壊圧力以上の圧力で注入し、地層の中に高浸透性でかつ強度を持つネット状（木の根の形状）の骨格構造を形成することで、MH 層の安定化を図ると同時に MH 層の流体生産性を向上させる手法である。そのイメージを図 3-4 に示す。

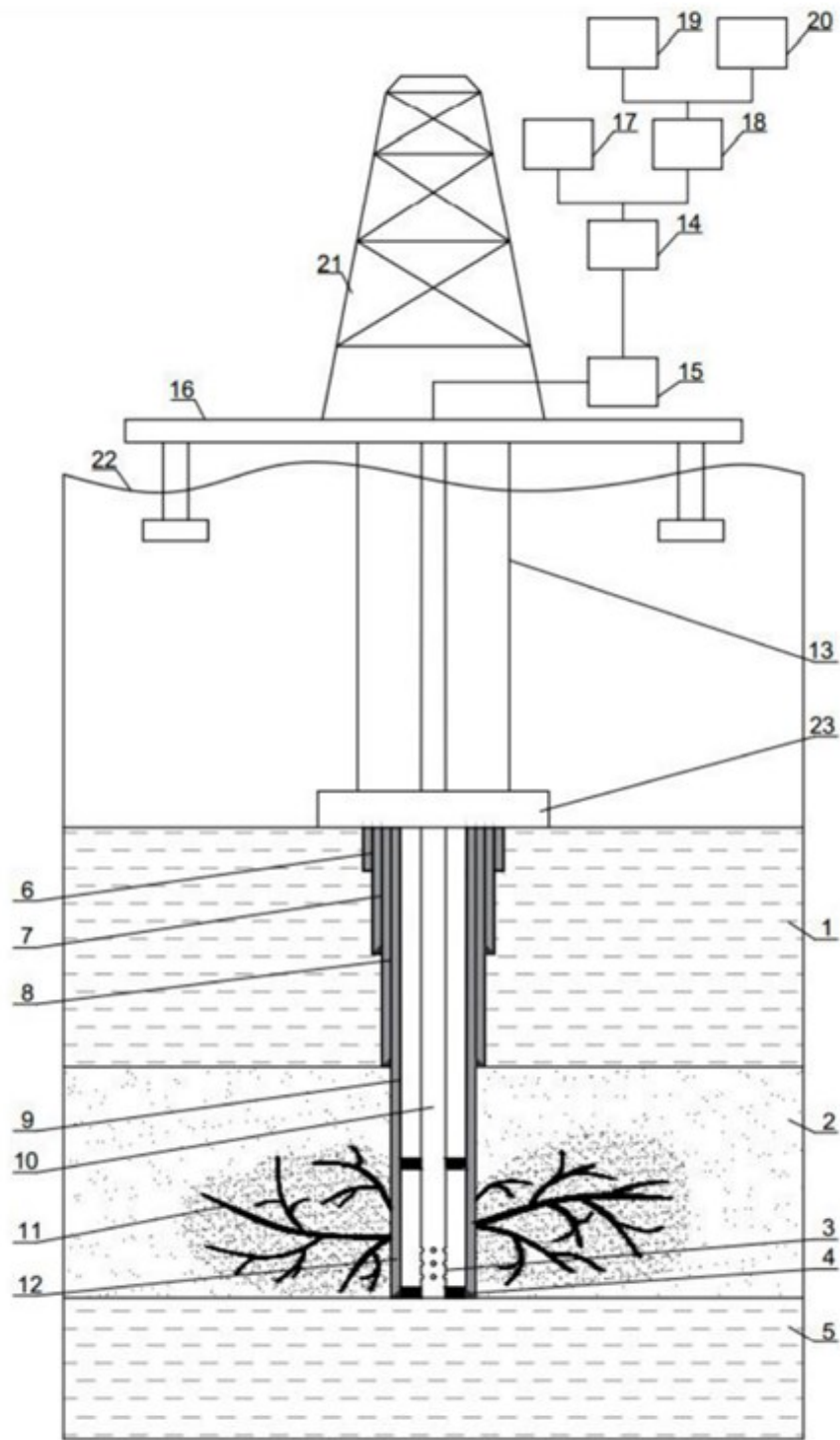


図 3-4 発泡グラウトによる
 海洋泥質粉砂型 MH 層の改造のイメージ
 (孫ほか, 2018)

同手法は、主に以下の工程から構成される。

- (1) 海底表面から対象深度まで削井し、坑井仕上げを行う。
- (2) モルタルと発泡液を配合し、均一な発泡モルタルを作成する。なお、発泡モルタル中における気泡が全体積の約 10～60%を占めるとされる。
- (3) 注入管を坑内に降ろし、前記発泡モルタルを MH 層に注入する。この際、注入圧力を MH 層の初期応力やせん断強度を上回るよう制御し、MH 層に割れ目を発生させる。
- (4) 注入後には、セメントの水和反応により固結されたモルタルは MH 層の中にネット状の骨格構造を形成する。また、発泡モルタルに含ませた気泡により骨格構造の中に孔隙が形成し、その孔隙率が 10%～60%とされる。
- (5) 上記の貯留層改造を済ませた MH 層から天然ガスを生産する。

なお、上記の工程 (2) では、発泡液には液体 CO₂ とベース液を混合したものを採用し、機械攪拌または圧縮空気によりモルタルと混合させる。また、工程 (3) では、MH 層を数段に分けて個別に注入 (改造) することが可能であるが、この場合は各段の深度間隔を 3～8m とされる。このように改造を施された MH 層では、発泡モルタルによる骨格構造は木の根のように地層を強化できる一方、MH 層の浸透率を初期値の 10 倍以上に改良することができ、生産性の向上やジオメカニックス的リスクの低減の両立が可能とされる (上記、一部の文言表現は原文の直訳である)。

同手法は、主に中国南シナ海の MH 層 (粘土混じりシルト層型) を対象に開発されたもので、中心粒径が数十 μm 、有効浸透率が 1mD 以下の同地域の MH 層には有効とされる。またその仕組みから、同手法は、低浸透地盤に応用される割裂地盤注入改良工法と、シェール層などの低浸透貯留層を対象とした水圧破碎回収法と組み合わせたものと見なすことができる。しかし、水圧破碎または割裂注入を実現するためには、地層の破壊強度を上回る注入圧を発生させる必要があるが、粒径が大きく、浸透率が比較的高い砂層の場

合は、ポンプの圧送能力（最大注入レート）の関係上、高い注入圧を発生することが難しくなる。また、浸透・拡散しやすい気相や液相に対し、発泡モルタルの中の固相（プロパントとする粗粒砂）は未破碎の地層に侵入できないため、坑井の中に堆積してしまうことになる。さらに、仮に脈状の割れ目を形成したとしても、脈状骨格構造（初期値浸透率の10倍、明細書による）よりも砂層のほうが浸透率が高いため、水やガスは脈状骨格を経由せず、砂層から直接に産出することになる。すなわち、砂層の内部浸食や出砂を防止できず、砂の流出により支えを失った脈状骨格自体の維持も困難になると予想される。よって、この手法は日本南海トラフの砂層型MH層の安定化に応用することが困難であると考えられる。

3.3 まとめ

MH層からの出砂を遮断するために、過去のフィールド産出実験では、従来の石油・天然ガスの生産において実績があるグラベルパック・スクリーンや米国 Baker Hughes 社の記憶性多孔質樹脂「GeoFORM™」を投入した。しかし、これらの手法は、室内試験において十分な耐減圧・出砂防止効果があったにもかかわらず、実際の生産開始から僅か数日後に出砂が発生し、その出砂対策効果が不十分であったことが明らかになった。

一方、MH層を対象に提案された安定化手法としては、微生物の活動により析出する炭酸カルシウムを利用した微生物固化法や、発泡グラウトにより脈状（木の根状）の高浸透性骨格を造成する手法が挙げられる。両者とも、本来土木工学・地盤工学分野由来の手法であり、洋上プラットフォームの建設のための海底地盤強化や、低浸透性の粘土地盤の改良において実績がある。しかし、前者は固結強度の低さ、微生物活動の制御の難しさおよび生物安全上の懸念があることから、本論文を執筆する時点ではまだ実用化していない。また後者は、主に浸透性が低い泥質シルト層 MH に特化した手法であり、浸透性が比較的高い砂層型 MH では水圧破碎の限界上実施することが難しいと予想される。そのため、1) ある程度の浸透性を有する砂層に対応でき、2) 固結期間が短く、3) 比較的高い固結強度を実現可能、かつ 4) 改良効果の予測と制御が容易にできる新たな MH 層安定化手法が求められる。

第 4 章 技術提案

前述の MH 産出時における地層の出砂問題を解決するためには、石油工学と土木工学の融合的なアイデアとして、地盤改良剤[※]を用いた MH 層の安定化手法を提案した（劉・栗原，2018）。また同手法は、論文を執筆する時点において日本，米国で特許を取得しており，中国において審査中である。本章では，この手法の概要と課題について説明する。

- 提案概要
- 課題

※土木工学・地盤改良分野では，建設資材の一つとして地盤改良「材」と書くことが一般的であるが，石油工学（MH 層安定化）では，坑井を通して地層に注入する薬剤というイメージが強いことから，本稿では地盤改良「剤」と表記する。

4.1 提案概要

本提案は、坑井の周辺または貯留層の広い範囲にわたり、浸透性と強度の維持を両立した改良体を作成することで、MH層の安定化改良を実現する手法である。改良体の作成は、主に以下の2方法により実現させる：

- (1) 対象MH層の孔隙に砂粒子を固着できる薬剤を注入し、MH層の浸透率をある程度に維持しながら、未固結または固結が弱い砂層の強度を向上させる方法。
- (2) 対象MH層とケーシングとの間に発生したまたは意図的に作成した空洞に、樹脂被覆砂（resin coated sand, RCS）など自己硬化性を有する粒子を充填することで、多孔質の人工砂岩を形成する方法。

4.1.1 手法1（地盤改良剤による砂粒子固化法）

まず、作成手法（1）のメカニズムについて説明する。対象MH層は、主に細粒砂から構成する比較的浅い地層であり、粒子同士の固結が弱いまたは未固結である（図4-1（a））。また、粒子の間の孔隙にMHが充填しており、飽和率によっては砂粒子を固着する役割も果たしている（図4-2（a））。しかし、このMHを分解させると、砂粒子間の固着力を奪ってしまい、砂粒子に流動性をもたらし出砂障害を起こす。

これに対し、作成手法（1）では、上記の対象MH層の孔隙に砂粒子を固着できる改良剤を注入し、MHとは別に独自の固結物を生成し、砂粒子を固着する（図4-2（b））。このように改良を施したMH層（改良体）では、砂粒子を固着していたMHを分解させても、改良剤を介して砂粒子を固着できるため、出砂を起こすリスクを大きく低減できる。

砂粒子を固着させる薬剤としては、1) MH層に注入でき、2) MH層の温度、圧力、地層水の条件において固結できる各種地盤改良剤等が挙げられる。例えば、セメント系、水ガラス系、高分子系（アクリルアミド系、尿素系、ウレタン系等）地盤改良剤、又は炭酸カルシウムをはじめとする沈殿や、ポリマー及びその他の固形物の生

成により，砂粒子を固着することができる改良剤から選ばれる．

また，理想的には，3) 作成した改良体が圧力の伝播とガスの生産に十分な浸透率を有し，かつ，4) MH が分解しても，地層圧密，砂粒子の剥離または出砂を起こさない程度の強度を有することが望ましい．改良体の浸透性と強度の維持の両立が困難な場合は，出砂を起こさない強度を優先させ，その後の浸透率回復措置として改良体を対象に水圧破碎または化学処理を行う選択肢もある．

さらに，薬剤の注入範囲は，坑壁から数十 cm から，貯留層の広い範囲にわたるまで設定しても良い．前者は，坑井近傍の出砂対策として実施する場合に有効であるが，後者の場合は，未固結または固結が弱い MH 層を在来型ガス田に近い性質まで改良するため，より安定的な長期生産を期待できる．

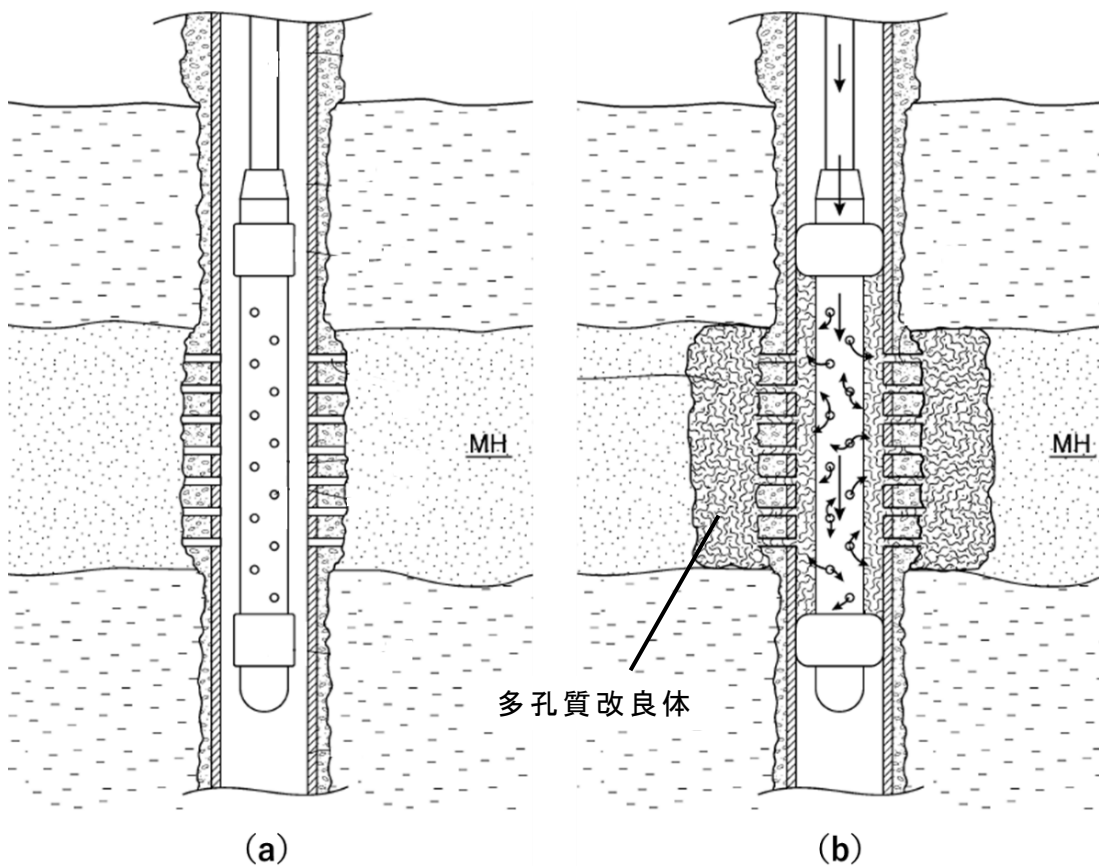


図 4-1 対象 MH 層に薬剤を注入するイメージ
(劉・栗原，2018)

(a) 注入前，(b) 注入後

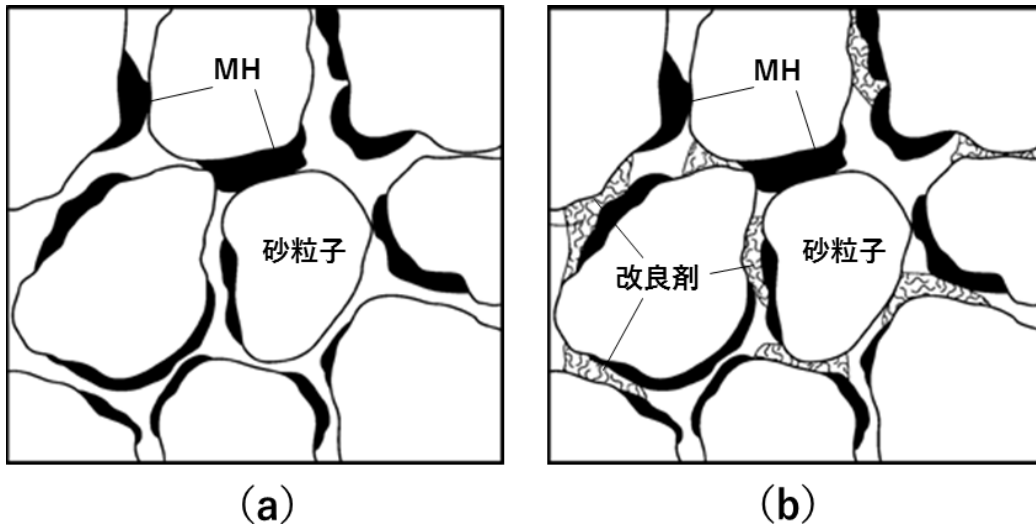


図 4-2 薬剤注入に伴う MH 貯留岩内の固相分布のイメージ
(劉・栗原, 2018)
(a) 注入前, (b) 注入後

4.1.2 手法 2 (自己硬化性粒子による人工砂岩造成法)

次に、改良体の作成手法 (2) のメカニズムについて説明する。

MH 層を掘削時には、比較的粒径が大きく、固結が弱い砂層では坑径の拡大が起こりやすく、セメンチング不良や坑内膨張式の出砂対策装置の密着不良になりやすい。また、MH の長期生産においては坑井近傍での圧力勾配 (drawdown) や流体の速度が大きく、前記作成手法 (1) による改良体が内部浸食を受けて劣化・破損し、ケーシングの外周に空洞が生じることが予想される。これに対し、作成手法 (2) は、敢えてこの拡大部または空洞 (図 4-3 (b)) を利用し、そこに自己硬化性の粒子を充填することで、空洞部に浸透性と強度を両立した多孔質充填体 (人工砂岩) (図 4-3 (c)) を作成し、出砂や坑壁崩壊のリスクを低減させる。

好適には、自己硬化性の粒子 (充填材) として、直径 0.1mm ~ 10mm の珪砂、セラミック、ガラスビーズといった硬質粒子の表面に、固着剤や接着剤等をコーティングしたものから選ばれる。なお、固着剤としては、常温、乾燥状態において固体であるが、熱、水、配合剤または触媒等により化学反応が起こり、セメント水和物、炭酸カルシウムまたは高分子物質等の固形物を生成することで粒子を固着する性質を有するものから選ばれる。例えば、樹脂被覆砂 (resin coated sand, RCS) 樹脂被覆セラミック粒子、樹脂被覆ガラスビーズ、及び前記改良剤を表面にコーティングした砂、ガラスビーズまたはセラミック粒子等が挙げられる。

また、自己硬化性粒子を MH 層の空洞に充填する手順として、以下のように提案する。

- 自己硬化性粒子を予め、その運搬媒体となる圧送液に分散させ、適切な粘性と密度を有するスラリーを作成する (図 4-4 (a))。
- 上記スラリーを坑内注入装置により MH 層に送り込み、ケーシングの外周に発生した空洞に注入・充填する。その際、スラリーの中の圧送液が対象地層に浸透していき、残りの固形粒子は粒子同士が密着するように空洞を充填する (図 4-3 (c))。
- スラリーの注入量、注入ツールの内容積、注入圧力とレート

の変化，および事前に把握した空洞のサイズからは，空洞への充填率の推定・モニタリングを行う．

- 空洞が十分に充填されたと判断した場合，粒子表面の固着層に化学反応を促進させる熱水，配合剤または触媒等を地層に注入する．これにより，固着層における化学反応により接着物質を生成し，粒子同士を強く固着し強度が高い人工砂岩を作成する（図 4-4 (b)）．また，この人工砂岩は，固着された粒子同士の間隙を有することから，生産流体を透過させるために十分な浸透性を維持でき，出砂を防止しつつ，安定したガス生産を実現できる．

なお，上記の手順はあくまで一例であり，実際の操業時の条件に合わせて適宜変更・追加・一部の手順を複数回に実施しても良い．

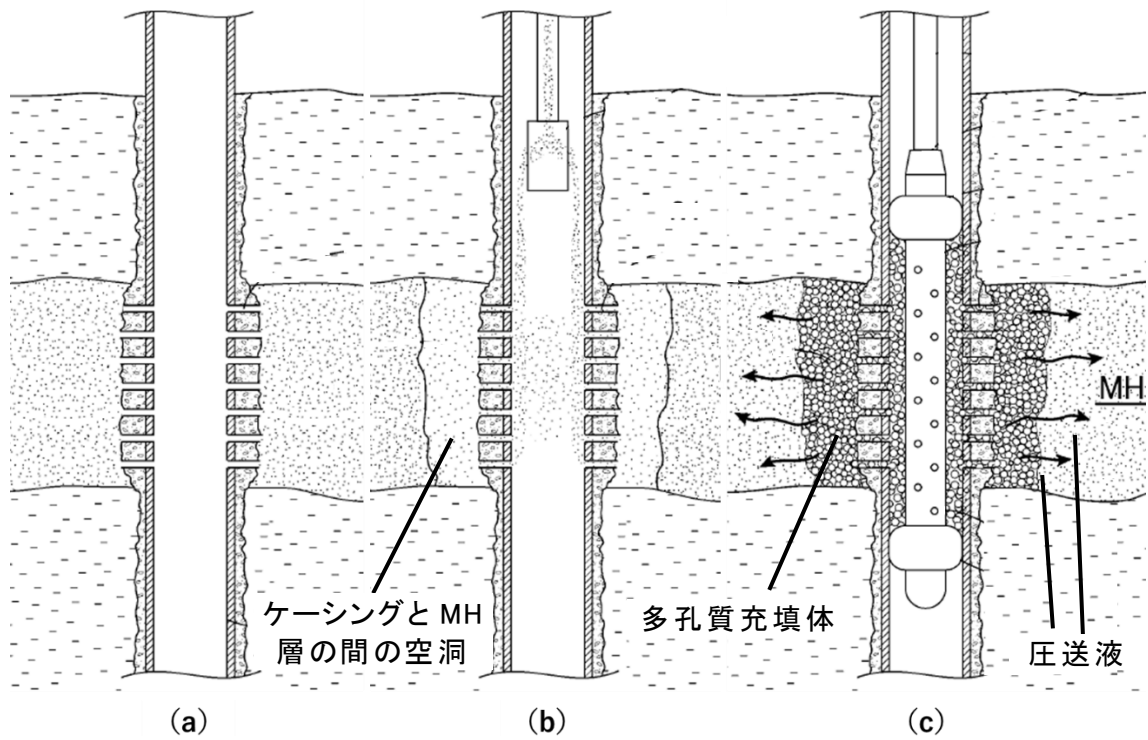


図 4-3 対象 MH 層に自己硬化性粒子を充填するイメージ
(劉・栗原, 2018)

(a) 改良前, (b) 前処理後, (c) 充填・固化後

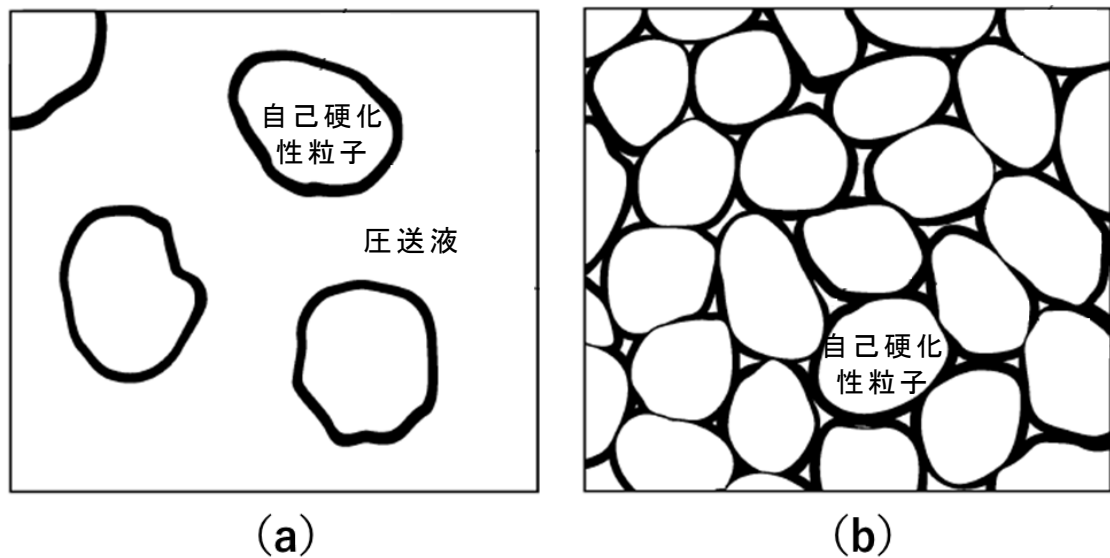


図 4-4 自己硬化性粒子による多孔質充填体を作成するイメージ
(劉・栗原, 2018)

(a) 圧送中, (b) 充填・固化後

4.2 課題

本手法は、MH 層に地盤改良剤を注入するという試みが世界初であり、それを実用化するまでにいくつかの課題を解決しなければならない。

まず、一番目の課題は MH 層への地盤改良剤の注入可否である。表層地盤や石油、天然ガスの貯留層とは異なり、MH 層の場合は孔隙の大半が固体の MH により充填され、改良剤の流動経路となる有効孔隙が非常に狭い。また、砂の粒径が小さくなるにつれ孔隙のサイズも狭くなり、MH 充填による影響を受けやすくなる。一方、地盤改良剤はさまざまな種類があるが、比較的高い強度を発揮できるのは、セメントなどの有効成分を微粒子（中心粒径 = 1~10 μm ）として媒体中を分散させて注入するタイプである。この場合、砂層（ $d_{50}=130\ \mu\text{m}$ 、南海トラフ MH 層の場合）に MH が充填した場合の有効孔隙のサイズもこの程度と予想したことから、改良剤によっては注入限界があると予測される。

次に、仮に改良剤を MH 層に無事に注入できたとしても、MH 層の条件により従来の固結効果を発揮できない可能性がある。特に、MH 層の場合は孔隙の大半が MH により充填され、有効孔隙がわずかしか残っていない。また、砂粒子の表面はほとんど MH により覆われており、改良剤との有効接触面積をどの程度確保できるかは不明である。さらに、MH 層の温度は数 $^{\circ}\text{C}$ ~数十 $^{\circ}\text{C}$ が一般的であるが、この温度では地盤改良剤の強度発現は地表条件と比べて所要時間が長く、強度値が低いことが予想される。このように、砂粒子との接触が不十分な状況において、ごく限られた改良剤により比較的低温の MH 層の砂粒子を有効に固着できるかも要検討である。

また、地中に注入する地盤改良剤は、地盤の強度を向上させると同時に、地層の孔隙を塞ぐことで大きな止水効果も発揮する。そのため、軟弱地盤の強度向上だけでなく、トンネルの掘削やダム建設時における止水工事にも多く利用されている。しかし、MH の生産では、砂を固着させることに加え、減圧の伝播や流体生産のために、改良後の砂層にある程度の浸透性を持たせることが不可欠である。そもそも MH 層は、通常の石油や天然ガスの貯留層と比べて、

MH の存在下における有効浸透率が数桁低いとされる（鈴木ほか，2010）が，それよりも大幅に低下させてしまえば，圧力の伝播や流体の生産が困難になると予想される．そのため，石油，天然ガスと同様に，流体を効率的に生産できる程度の浸透率を改良体に持たせることができるかは要検討である．

さらに，表層地盤とは異なり，MH 層の場合は強減圧による有効応力の上昇や流体生産による内部侵食に年単位にさらされる．長期間にわたる安定生産を目指すためには，MH が分解後の貯留層（少なくとも坑井周辺の改良体）に強減圧と内部侵食に耐えられる強度を持たせることが大切である．仮に，改良体の劣化による破損が起きた場合においても，その補修方法として充填された自己硬化性粒子は，MH 層の温度・圧力・塩分条件で十分に硬化できることが求められる．

以上のことから，本手法を実際の MH 生産に応用させるためには，以下の 4 つの課題を解決することが肝要となる．

- (a) 改良剤が MH 層に注入できること．
- (b) 注入された改良剤が地層条件下で MH 層を固結できること．
- (c) 固結された MH 層が十分な浸透性を有すること．
- (d) MH が分解しても，改良された砂層（改良体）またはそれを補修するための充填体が強減圧に耐えられる強度を有すること．

第 5 章 実験設計

前記の技術提案に係る 4 つの課題を解決するためには，本研究では一連の実験を設計し，本手法の有効性・有望性について検証を行った．本章では，これらの実験の設計について説明する．

- 設計思想
- ハイドレート生成物質
- 地層モデル及び供試体の材料
- 改良剤の選定
- 評価指標の選定と測定
- 実験装置の設計，製作，運用

5.1 設計思想

まず、本研究の大前提として、地盤改良剤が砂の流出を防ぐ効果を有することを確認する必要がある。すなわち、MH を含まない水層（或いは MH を完全に分解させた砂層）に改良剤を注入した場合に、改良剤未注入の場合と比べて砂の流出を有効に防げることを確認する必要がある。また、フィールド条件では、砂の不安定な挙動を起こさずに完全に MH を分解させることが困難であるため、MH が未分解または一部のみを分解させた時点から改良剤を注入することを想定している。そのため、ある程度の MH 飽和率を有する MH 層における適用性を検証しなければならない。さらに、実際の MH 生産に応用するためには、本手法による改良体の物性に影響を与える得る要素を事前に解明しておき、それに基づきフィールドに合わせた最適な改良体を形成する必要がある。

しかし、MH は高圧、低温でのみ形成、維持できるため、それを取り扱う実験装置は比較的大型であり、サイズや重量の関係から大学の実験室で複数本のコアセルを設けることは困難である。一方、改良体の物性を定量評価するには大量の供試体を測定する必要があるため、供試体の大量生産が求められる。このギャップを埋めるためには、分厚いステンレス製の耐圧部品やそれを取り扱うための起重設備を必要としない、すなわち、実験装置及びその補機類の軽量化を最大限に実現できる、常圧に近い条件で生成、維持できる模擬ハイドレートを用いて実験する必要がある。

メタンガスのように、水と反応して水和物を生成できる物質が多数あるが、模擬ハイドレートの種類によっては作製するハードルが大きく異なる。また、模擬ハイドレートは MH ではないことから、必然的に一部の性質しかを模擬できないという限界がある。さらに、こうした模擬ハイドレートの生成物質は、本来の MH 層や地盤改良材の適用分野である表層地盤にも存在しておらず、地盤改良剤の効果への影響も不明である。そのため、本研究では、検証しようとする MH 層の条件に合わせてそれぞれ性質が異なる模擬ハイドレートを選択し、それが地盤改良剤の効果への影響の有無を確かめた後に実験に用いる必要がある。

また、模擬ハイドレートはそれぞれの化学特性があるため、それに耐薬品性を有する材料を用いて、実験の目的を達成できる実験装置を設計・作製する必要がある。このような実験装置は、既存品がないまたは確認できないため、自ら設計・製作する必要がある。その際、先行研究の文献と容易に比較できるように、業界の一般規格に合わせて設計することが大切である。さらに、自作した装置は十分な機能と精度を確認する性能試験などをクリアしてから実験に用いる必要がある。

以上のことから、本実験の流れを以下のように設定した（図 5-1）。

- (1) 実験の目的に合わせて実験装置を設計，製作する。
- (2) 本来の用途において表層地盤を対象とした地盤改良剤を水層に注入し，その改良体の浸透性や出砂の有無を確認する予備実験。
- (3) 常圧または低圧で生成，維持できる模擬ハイドレートの生成特性や改良剤の効果への影響を解明し，それを用いて模擬ハイドレート供試体を量産化する予備実験。
- (4) 上記模擬ハイドレートを含む砂層を対象に薬剤注入実験を行い，本提案手法の適用性，即ち薬剤の注入性，固結性，改良体の浸透性と強度の4つの疑問を解明する。また，適用性に問題点がある場合は，それを解決する施策も検討する。
- (5) 改良体の物性に影響を与え得る要素に関する定量的な検討を行う。
- (6) 改良体の浸透率を確保しつつ，強度すなわち MH 層の安定化効果を高めるための最適解を探るケーススタディを行う。

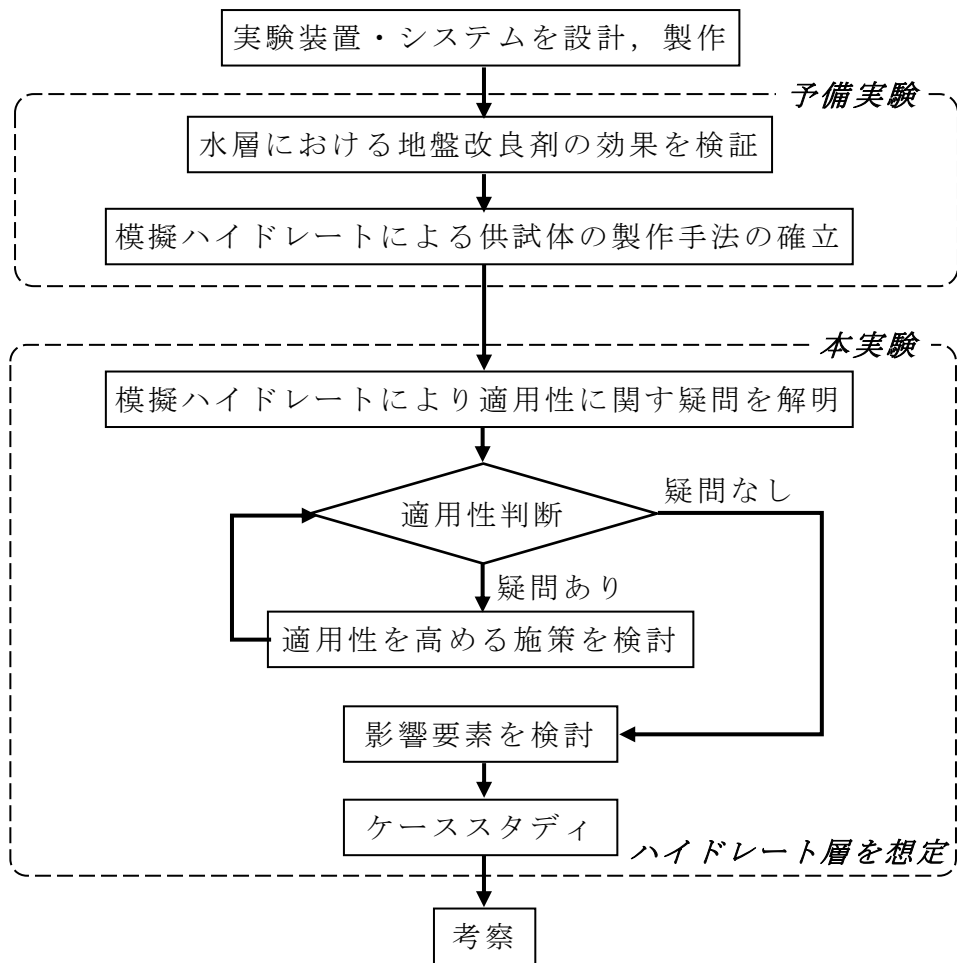


図 5-1 本研究の流れ

5.2 ハイドレート生成物質

MHは、低温、高圧状態でのみ存在できる。その平衡曲線によれば、南海トラフのMH層温度（約13℃）では平衡圧力がおよそ10MPaであり、0℃でもMHの安定には2.5MPa以上の圧力が必要とされる（図2-2）。しかし、この圧力において改良剤の注入、養生、ハイドレートの分解、浸透率や強度等の物性測定を行うことは、効率面、安全面、コスト面から困難である。さらに、メタンガスは可燃性、爆発性という性質を有することから、取扱いには関係法令をクリアしなければならず、実験室では扱いにくい欠点がある。そのため、効率的に実験を行うためには、メタンガスの代わりに、常温、常圧に近い条件でハイドレートを生成でき、かつ、毒性や腐食性がない、または低い代替物質を検討する必要がある。

本研究では、メタンの代替物質として、四級アンモニウム塩である臭化テトラ-*n*-ブチルアンモニウム（ $[\text{CH}_3(\text{CH}_2)_3]_4\text{NBr}$ 、以下はTBABと記す）と、メタンと同じく飽和炭化水素であるイソブタン（ $\text{iso-C}_4\text{H}_{10}$ ）を採用した。各代替物質の性質と採用理由については以下に説明する。

5.2.1 TBAB及びTBABハイドレート

TBABは常温で白い結晶であり、水に極めて溶解しやすく、ガスハイドレートの結晶構造に類似した水和物TBABハイドレート（以下、THと記す）を生成できる。図5-2には、大気圧におけるTHの生成温度と溶液の初期濃度との関係を示す。水溶液の初期濃度によっては、3℃～12℃以下の扱いやすい温度域でTHを生成可能であることが分かった。また、水溶液の初期濃度=20w%を境目に、水和数が異なる2タイプのTHを生成できることが分かった。高濃度側で生成するTHをタイプAまたはタイプI、低濃度側で生成するTHをタイプBまたはタイプIIと呼ぶ。さらに、8℃以下の温度域においては、冷却過程で一時的にタイプAが生成されるが、タイプBの方が安定であるため、最終的にはタイプAが消滅しタイプBのみとなる（生越ほか、2004）。表5-1には、両タイプのTHの水和数を示す。研究者によっては水和数の測定値にバラツキ

があるが、それは攪拌しながら成長させた場合は水和数が大きくなるためである（熊野，2006，2017）。本研究では、供試体を静置する実験条件を加味し、タイプ A = TBAB・26H₂O，タイプ B = TBAB・38H₂O とした。

表 5-1 TH の水和数（熊野，2017）

| タイプ | 水和数 | | | |
|-------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| | 生越ほか (2004) | 大山ほか (2005) | 熊野ほか (2006) | 浅岡ほか (2013) |
| タイプ A | 26 | 26 | 29 | 35 |
| タイプ B | 36 | 38 | 44 | 47 |

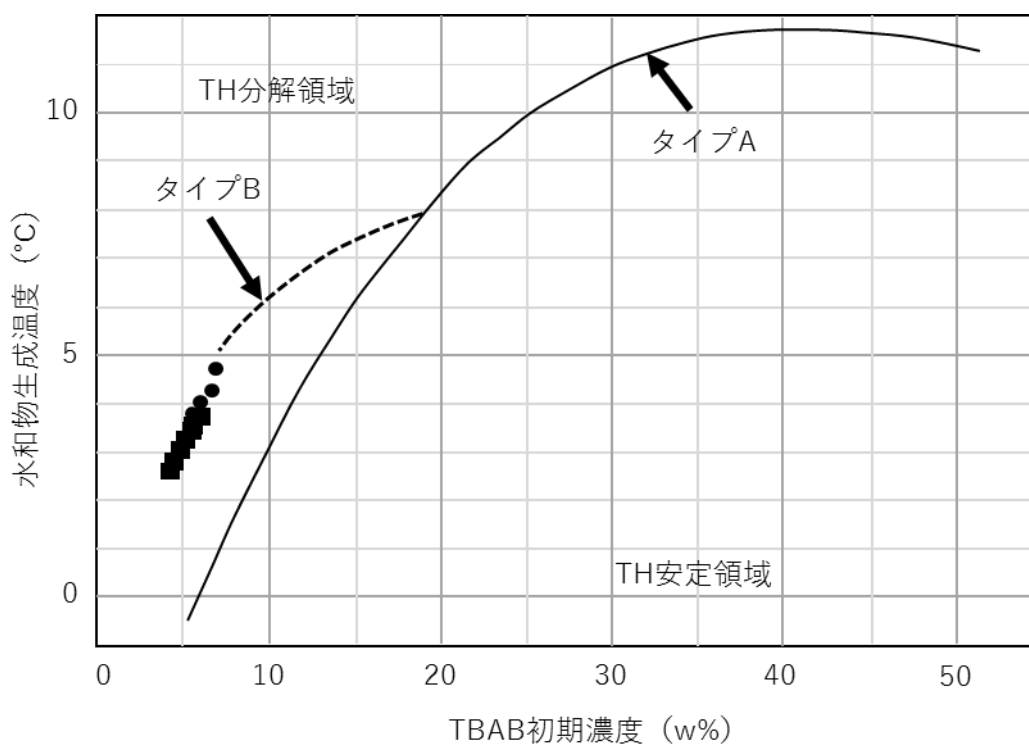


図 5-2 TBAB 水溶液の初期濃度に対する TH の生成温度（生越ほか，2004）一部改変

上記の性質から、砂粒子の孔隙に TBAB 溶液を充填させ、それを冷却することで、TH を含む模擬ハイドレート供試体を作製可能

であることが分かった．なお，孔隙中に含まれる TH の飽和率は，式 (5-4) により算定することができる．また，作製しようとする供試体の飽和率から，所要の溶液濃度を式 (5-5) により算出することもできる．なお，TH の生成温度が低い程，溶液の平衡濃度すなわち溶液に残余する TBAB の量が少なくなり，その分 TBAB の利用率が高くなるため，本実験では反応温度を 3℃ に設定した．その際，溶液の平衡濃度 = 5w%，TH にタイプ B のみが存在する．また，溶液の密度に関しては，佐々木・小川 (2013) による測定結果に基づき，実験式 (5-6) により決めた．式 (5-5) により算出した目標の TH 飽和率に対して所要な初期 TBAB 溶液濃度の関係を図 5-3 に示す．

$$S_{TH} = \frac{V_{TH}}{V_{pore}} = \frac{m_{TH}/\rho_{TH}}{m_{液初期}/\rho_{液初期}} \quad (5-1)$$

すなわち，

$$m_{TH} = \frac{S_{TH}m_{液初期}\rho_{TH}}{\rho_{液初期}} \quad (5-2)$$

一方，

$$c = \frac{m_{TBAB残}}{m_{液残余}} = \frac{m_{TBAB初期} - m_{TBAB-in-H}}{m_{液初期} - m_{TH}} = \frac{m_{液初期}C_0 - m_{TH}/M_{TH}M_{TBAB}}{m_{液初期} - m_{TH}} \quad (5-3)$$

(2) と (3) を連立させると，

$$S_{TH} = \frac{(C_0 - c)M_{TH}\rho_{液初期}}{(M_{TBAB} - M_{TH}c)\rho_{TH}} \quad (5-4)$$

$$C_0 = c + \frac{(M_{TBAB} - M_{TH}c)S_{TH}\rho_{TH}}{M_{TH}\rho_{液初期}} \quad (5-5)$$

なお，

$$\rho_{液初期} = 0.1429c^2 + 0.0774c + 0.9999 \quad (5-6)$$

なお， S_{TH} = TH の飽和率， V_{TH} = TH の体積 (cm^3)， V_{pore} = 孔隙の体積 (cm^3)， ρ_{TH} = TH の密度 ($1.03\text{g}/\text{cm}^3$)， $\rho_{液初期}$ = 溶液の密度 (g/cm^3)， m_{TH} = TH の質量 (g)， $m_{液初期}$ = 初期に存在した溶液の質量 (g)， $m_{TBAB初期}$ = 初期溶液に溶解した TBAB の質量 (g)， $m_{液残余}$ = 平衡状

態における残余溶液の質量 (g), $m_{TBAB残}$ = 平衡溶液中に残余する TBAB の質量 (g), $m_{TBAB-in-H}$ = TH に生成した TBAB の質量 (g), c = 冷却温度における TBAB の平衡濃度 (w%), C_0 = TBAB 溶液の初期濃度 (w%), M_{TBAB} = TBAB の分子量 (322.37), M_{TH} = TH の分子量 (1006.37).

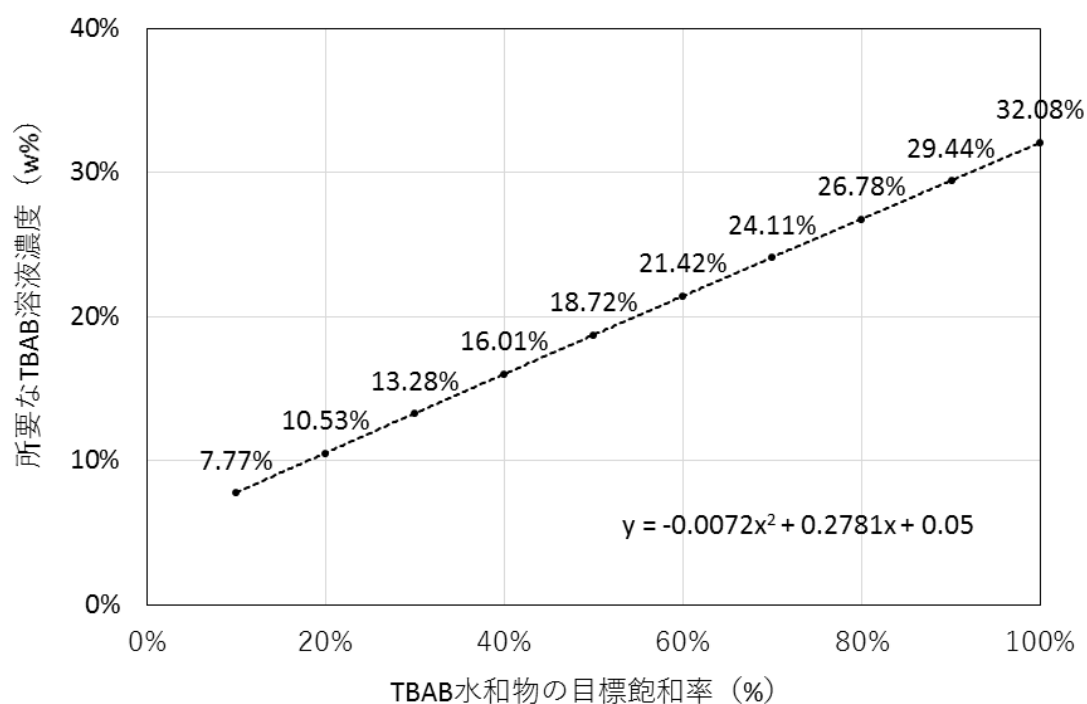


図 5-3 TH の目標飽和率に対する所要の TBAB 溶液濃度

なお, TBAB は, 化学物質の審査および製造等の規制に関する法律 (化審法) に登録されているが, 安全衛生法, 毒物・劇物取締法, 消防法に該当しておらず, 実験室条件では扱いやすい利点がある。また, TBAB の存在は, 本研究で使用するセメント系地盤改良剤の効果にも影響がないとされる (後述)。

5.2.2 イソブタン及びイソブタンハイドレート

実際の MH 層では、薬剤の注入に伴い分解ガスの発生が考えられる。分解ガスの発生により孔隙流体の組成や性質が大きく変わるため、薬剤の注入障害や一旦注入した薬剤の排出などを引き起こすリスクが予想される。しかし、TH は分解後に溶液になり、MH のように分解ガスを発生しないため、このような挙動を検証するには限界がある。そのため、MH のように分解ガスを生成でき、かつ TH のように低圧で生成・維持可能で扱いやすい代替ガスハイドレートを実験に用いることが望ましい。

本研究では、分解ガスに係る挙動を検証するために、イソブタン ($\text{iso-C}_4\text{H}_{10}$) とそのハイドレート ($\text{iso-C}_4\text{H}_{10} \cdot 17\text{H}_2\text{O}$, 以下: i-BH) を採用した。イソブタンは、常温常圧で気体となる飽和炭化水素 (C1~C4) の中で、もっとも低圧でかつ単一成分によって水和物を生成できる物質である。その蒸気圧および水和物の平衡曲線を図 5-4 に示す。純水条件では、 2°C 以下、 168kPa 以下で i-BH を生成でき、また常圧 (101kPa) においては $-11.8^\circ\text{C} \sim -2.2^\circ\text{C}$ の温度範囲で水和状態を維持できる。これは、MH の生成、維持条件よりも大きく緩和され、大気圧開放状態における供試体の成形作業や、水槽実験などで外周圧の加圧が困難とされる不規則な形状を有する砂層の作製にも大変有利である。なお、この温度域は南海トラフの MH 層温度 (13°C) より大分低く、通常地盤改良剤は固結できないとされているが、改良剤に独自の添加剤を配合することで良好な固結効果を得ることができる(後述)ため、改良剤の効果検証には支障がないと考えられる。さらに、真夏日の室温 (40°C) における蒸気圧は僅か 531kPa であることから、災害などで長期停電による冷却喪失の場合においても比較的に安全な圧力を維持できる。この点は、実験の低圧化、およびそれに伴う装置の軽量化、安全化、効率化、低コスト化に大変有利である。他には、この圧力よりも低圧で保管、生成、維持できるものとして、イソブタン ($\text{iso-C}_4\text{H}_{10}$) の異性体であるノルマルブタン ($\text{n-C}_4\text{H}_{10}$) も検討したが、その分子を格納できる H 型ケージを形成してくれる他のゲスト分子と混合せずには単独でハイドレートを生成できない(早野・内田, 1969)

ことから、できる限り単一成分のガスを使用したい実験の都合上割愛した。以上のことから、i-BH は最も低圧で安全に扱える代替ガスハイドレートである。

一方、i-BH は、TH などの従来の代替ハイドレートと比べ生成しにくく、核となる氷粒子が存在することで初めて生成し始まる性質がある。また、ポリエチレングリコール系グリース、エポキシ系接着剤等をごく微量に添加しても、その生成が著しく妨害される（早野・内田，1963）。表 5-2 に、TH と i-BH の生成時の誘導時間を示す。TH は、TBAB 溶液の初期濃度により水和数が異なるタイプ A とタイプ B を生成するが、いずれも 1 時間以内に水和反応が開始することが分かる。それに対し、i-BH は、通気から 15～20 時間以内に生成が確認されない一方、 Fe^{3+} と銅粉と共存する場合には 2～3 時間程度まで短縮できるとされている。ただし、本研究では、 Fe^{3+} と銅粉による実験結果への影響を回避するよう、こういった促進剤を一切使わず、純水のみで生成させることにした。

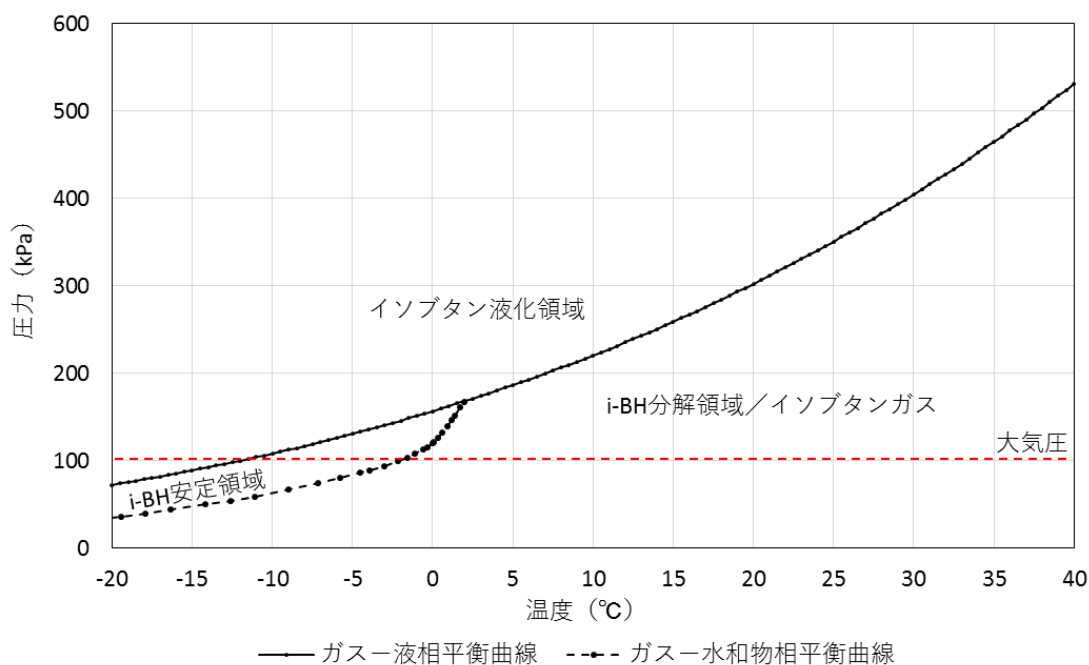


図 5-4 イソブタンおよび i-BH の平衡相図
 (Gas Encyclopedia HP) および (V.M. Buleiko, 2018)
 を基に作成

表 5-2 各種代替ハイドレートの生成誘導時間
(熊野ほか, 2006), (早野・内田, 1963) を基に作成

| ハイドレート | 誘導時間 |
|--------|--|
| TH* | 1 回目 (タイプ A) : 約 300 秒 2 回目 (タイプ B) : 約 2000 秒 |
| i-BH | 15~20 時間以内に生成なし. 一方, Fe ³⁺ と銅と共存する場合は 2~3 時間 |

※ : 溶液の初期濃度 = 20w%, 5°Cでの測定値

また, 塩分が存在した条件では, i-BH は MH 等のガスハイドレートと同様に, 平衡曲線が低温・高圧側にシフトする傾向がある(早野・内田, 1963). 図 5-5 に, NaCl 溶液-イソブタン-i-BH 系の平衡相図を示す. NaCl の濃度が 1%上昇するにつれて, 同圧力における平衡温度が約 0.54°C 低下することが分かる. こうした特性を利用し, 適切な濃度を有する NaCl 溶液をインヒビターとして投入することで, i-BH を一부분解させ, 飽和率を低下させることが可能である.

さらに, 本実験に使用したイソブタンガスは, 調達利便性の面から純度 95%の寒冷地用燃料ガス (250g CD 缶) を使用した. 同ガスには少量のノルマルブタン (5%) が含まれるが, 1) 実験温度 (-5°C) ではノルマルブタンが気化しにくいこと, 2) ノルマルブタンは単独でハイドレートを生成できないこと, および 3) イソブタンはノルマルブタンを取り込まれる H 型ケージを生成できないことから, ノルマルブタンは本実験の i-BH 生成に影響がないと考えられる. なお, 本研究におけるすべての実験は, 高圧ガス保安法をはじめとする各関係法令を遵守し, 安全を確保した上で実施した.

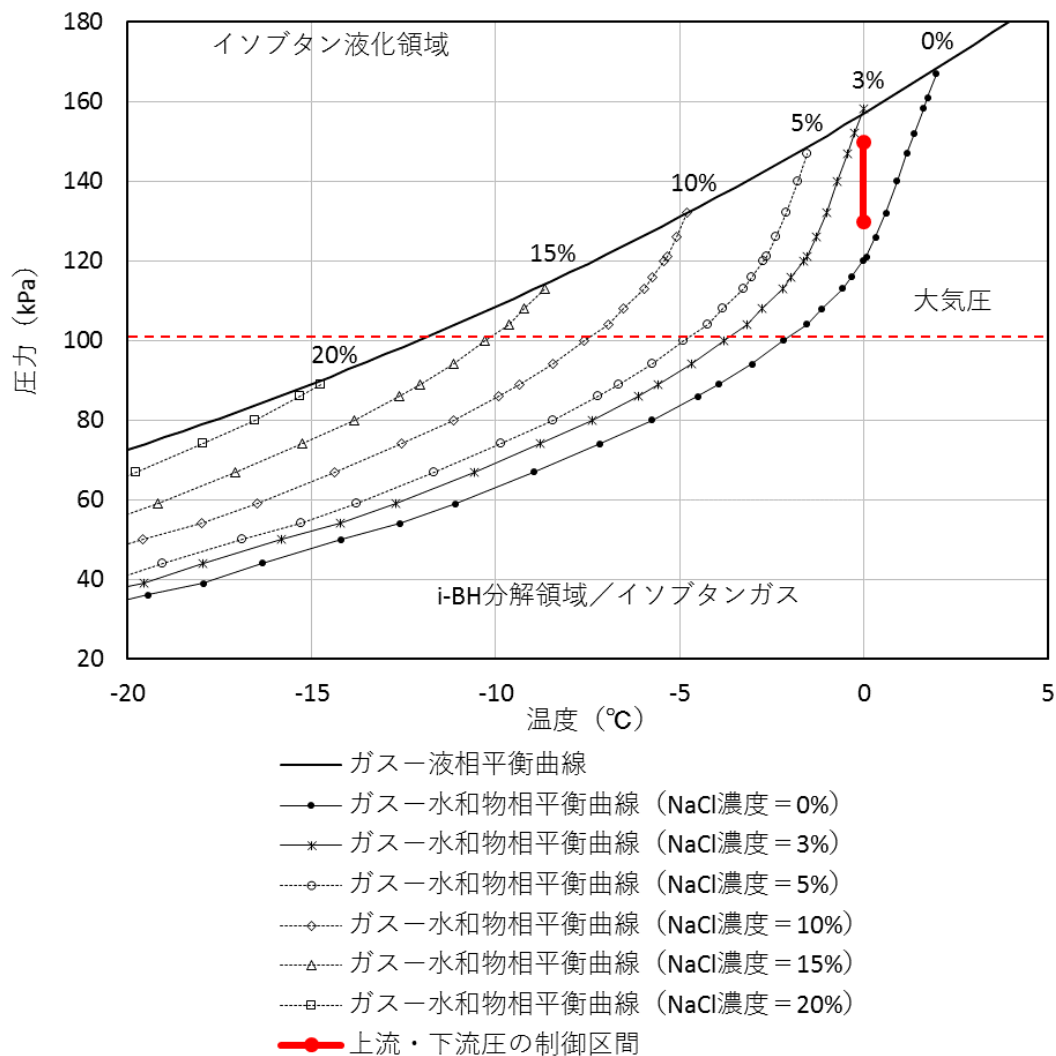


図 5-5 NaCl 濃度に対する i-BH の平衡相図
 (Gas Encyclopedia HP), (V.M. Buleiko, 2018)
 および (早野・内田, 1963) を基に作成

5.3 地層モデル及び供試体の材料

模擬砂層または供試体の材料は，なるべく開発対象とされる MH 層と粒径が近く，かつ，物理的，化学的に安定したものから選ぶことが望ましい．第 1 回海洋産出試験では，出砂の中心粒径 (d_{50}) = $120 \mu\text{m}$ であること (山本ほか, 2014) から，本実験では東北硅砂 7 号 ($d_{50}=128.8 \mu\text{m}$) を主要な地層材料として採用した．その粒径分布を図 5-6 に示す．また，粒径分布が異なる MH 層での適用性を検証するためには，東北硅砂 8 号 ($d_{50}=82.5 \mu\text{m}$) や，東北硅砂 7 号と 8 号との混合物も一部の実験に用いた (図 5-7)．さらに，これらの砂を水中落下法により模擬地層または供試体を作製する際に，粒径による沈降速度の違いから不均質を引き起こすリスクを極力抑えるように，落下率 (g/min) を低い値に抑えていた．

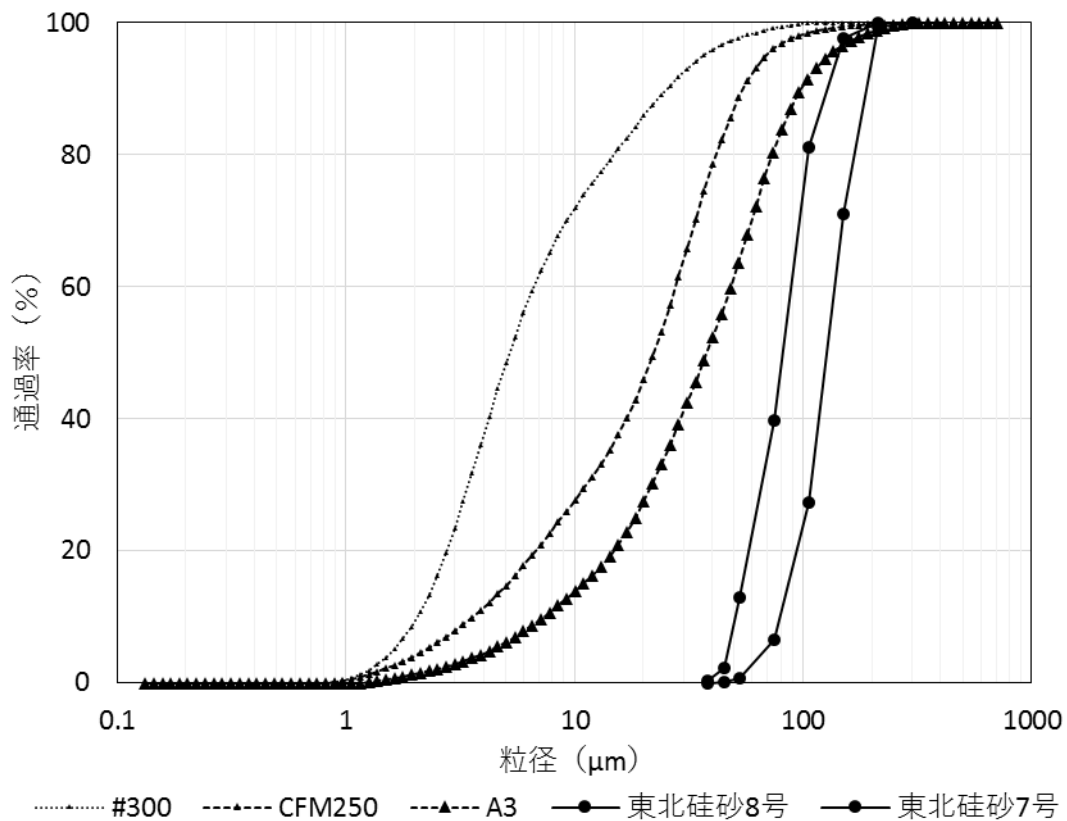


図 5-6 本研究に使用した硅砂および硅石粉の粒径分布

一方、異種ガスによる浸透率測定値の補正係数を求める用途（後述）では、浸透率の分布範囲が広く（10mD～5000mD）、かつ経時変化が生じないデモンストレーションコアを多数用意する必要があるため、より粒径が細かい珪石粉（#300, CFM250, A3, いずれも有限会社竹折礫業所製）を使用した（図 5-8）。その際、1）珪石粉（一部に珪砂 8 号を添加）の混合物は粒径分布の範囲が広く、水中では沈降速度の違いから不均質を避けられないこと、2）空気又はガスによる浸透率計測時の補正係数を求める用途上、孔隙に水が存在することが望ましくないことから、直接装填・突き固め法を採用した。



図 5-7 実験に使用した珪砂 7 号，8 号（東北珪砂株式会社製）

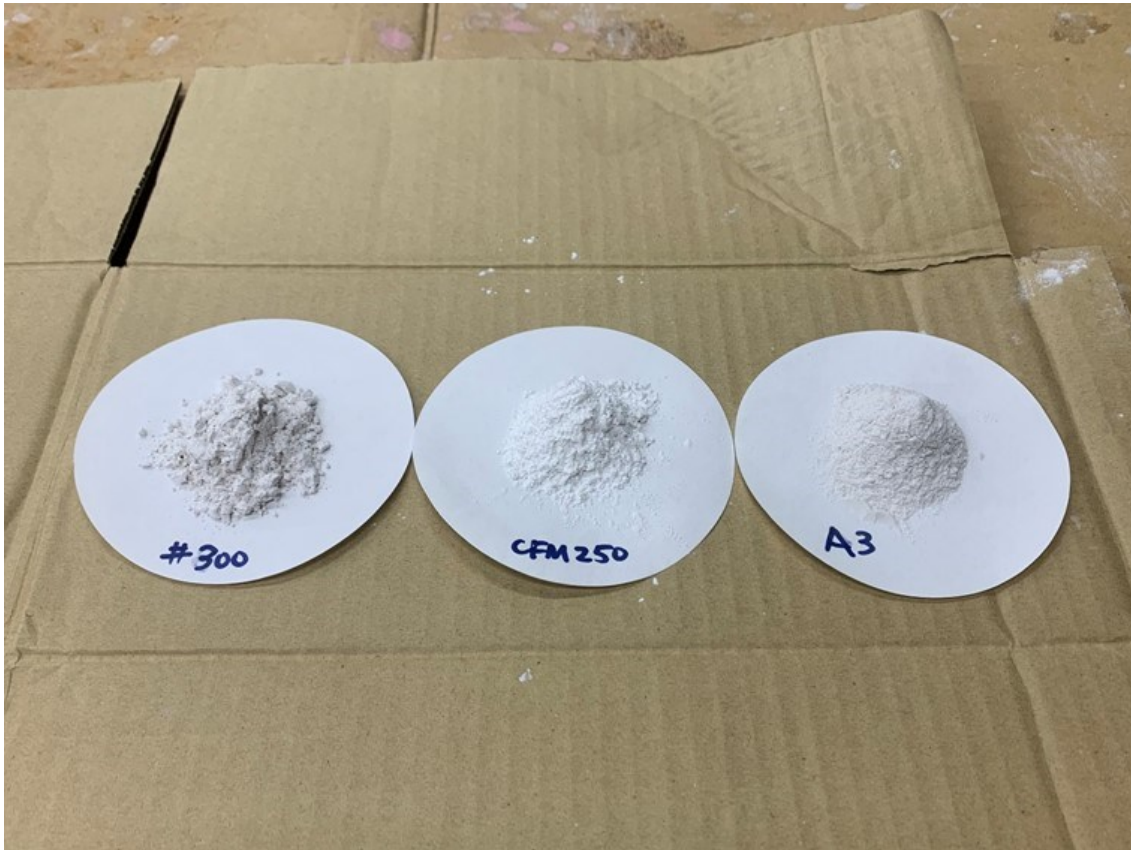


図 5-8 実験に使用した珪石粉：#300，CFM250，A3
(有限会社竹折砒業所製)

一方，地層流体は，なるべく開発対象とされる MH 層の地層水と同等または近似した成分を有することが望ましい．そのため，本研究では主に日本の南海トラフの MH 層の塩分濃度を参照した．表 5-3 に，基礎試錐「東海沖～熊野灘」で採取されたコア試料の塩分分析結果を示す．コアに含まれた地層水の全イオンのうち， Na^+ と Cl^- の合計組成百分率が 85%～88%程度であり，地層水の主要イオンとなっていることが分かる．また，各イオンの合計濃度は 40,000ppm 前後であることから，本実験に用いる模擬地層水に最大塩分濃度 = 40,000ppm の食塩（海塩）溶液を採用した．なお，坑井近傍における泥水循環の影響により塩分濃度に変化が生じる可能性を考慮し，地層水の初期塩分濃度による影響を検討する一部の実験では，その値を 10,000ppm～40,000ppm に設定し，参照実験では純水を使用した．

表 5-3 南海トラフ MH 層塩分濃度一覧（西尾ほか，2009）

| イオン | 採取深度：47m | | 採取深度：160m | | 塩素量 19‰ の海水 | |
|-------------------------------|------------------|---------------------|------------------|---------------------|------------------|---------------------|
| | 孔隙水中濃度 (g/kg) | イオン組成 百分率 (%) | 孔隙水中濃度 (g/kg) | イオン組成 百分率 (%) | 孔隙水中濃度 (g/kg) | イオン組成 百分率 (%) |
| Cl ⁻ | 22.136 | 54.3 | 22.951 | 51.4 | 18.980 | 55.04 |
| SO ₄ ²⁻ | 1.313 | 3.2 | 1.243 | 2.8 | 2.649 | 7.68 |
| HCO ₃ ⁻ | 2.214 | 5.4 | 4.017 | 9.0 | 0.140 | 0.41 |
| Mg ²⁺ | 0.339 | 0.8 | 0.344 | 0.8 | 1.272 | 3.69 |
| Ca ²⁺ | 0.162 | 0.4 | 0.163 | 0.4 | 0.400 | 1.16 |
| K ⁺ | 0.885 | 2.2 | 1.033 | 2.3 | 0.380 | 1.10 |
| Na ⁺ | 13.274 | 33.7 | 14.918 | 33.4 | 10.556 | 30.61 |
| 計 | 40.774 | 100.0 | 44.669 | 100.0 | 34.377 | 99.69 |

5.4 改良剤の選定

地盤改良剤は、その有効成分の分散形態から、溶液型や粒子型に分類される。また、有効成分のベースとなる物質からは、水ガラス系、セメント系および有機高分子系等にも分類される。表 5-4 に、市販の地盤改良剤（地盤注入剤）の分類とその特徴を示す。水ガラス系（薬液系）は、分散形態が溶液であることから、粘土地盤等といった低浸透性地盤への適用が可能であり、また高い止水性を発揮できるが、その浸透率の低さからは流体の生産に適せず、かつ改良体の強度は約 1MPa と低く、経年劣化もあることから、MH 層の安定化改良には適しないと判断した。一方、セメント系（非薬液系）改良剤は、水ガラス系と比べ遥かに高強度（3～4MPa）の改良体を形成でき、かつセメント水和物の成長形態により有効孔隙が残る（浸透率を確保する）可能性が高いが、粒径が比較的大きく、粘土、シルト、または細粒砂を多く含む地盤への注入性が劣る欠点がある。ほかには、尿素系やウレタン系注入剤が代表する高分子系（有機系）の改良剤もあるが、これらのタイプは日本国内の関連法令により使用禁止とされている。

表 5-4 地盤改良用注入剤の分類とその特徴（劉ほか，2020）

| 分類 | 主な有効成分 | 分散形態 | 特性 |
|------|-----------------|--------------|--|
| 薬液系 | 水ガラス | 溶液 | 注入性が優れる 止水性が優れる 強度が低い 経年劣化がある |
| 非薬液系 | セメント | 懸濁液， スラリー | 強度が高い 注入性が低い |
| 高分子系 | ウレタン系， 尿素系，他 | 溶液， その他 | 日本国内では 使用不可 |

MH 層の安定化改良では、一番求められるのは貯留層を強化させ、出砂を防ぐことである。そのため、改良体の強度を最優先に改良剤を選定すべきと考えられる。もちろん、MH 飽和率が 80%にも達する貯留層には、改良剤の注入性の良否も大切な指標ではあるが、改良体の浸透性、強度、耐久性、法規制への対応性等を総合的に考慮

し、本研究ではセメント系改良剤（中心粒径 $1.5\ \mu\text{m}$ ）とその配合剤（ポリカルボン酸分散剤）を選定した（図 5-9）。また、フィールドでは、改良体の強度を落とさずに養生日数を一日でも短縮したい、また、低温の貯留層において強度発現を促進したいという要求があると考えられるため、低温環境における改良体の早期強度の向上と養生時間の大幅な短縮を可能にした独自の促進剤 GA-01（E & P 国際商事株式会社）を一部の実験に使用した。なお、上記の地盤改良剤はいずれも表層地盤を対象に開発・製造されたものであり、本研究に使用されるハイドレートの生成物質である TBAB とイソブタンによる影響を受けないことを予備実験により証明する必要がある（後述）。

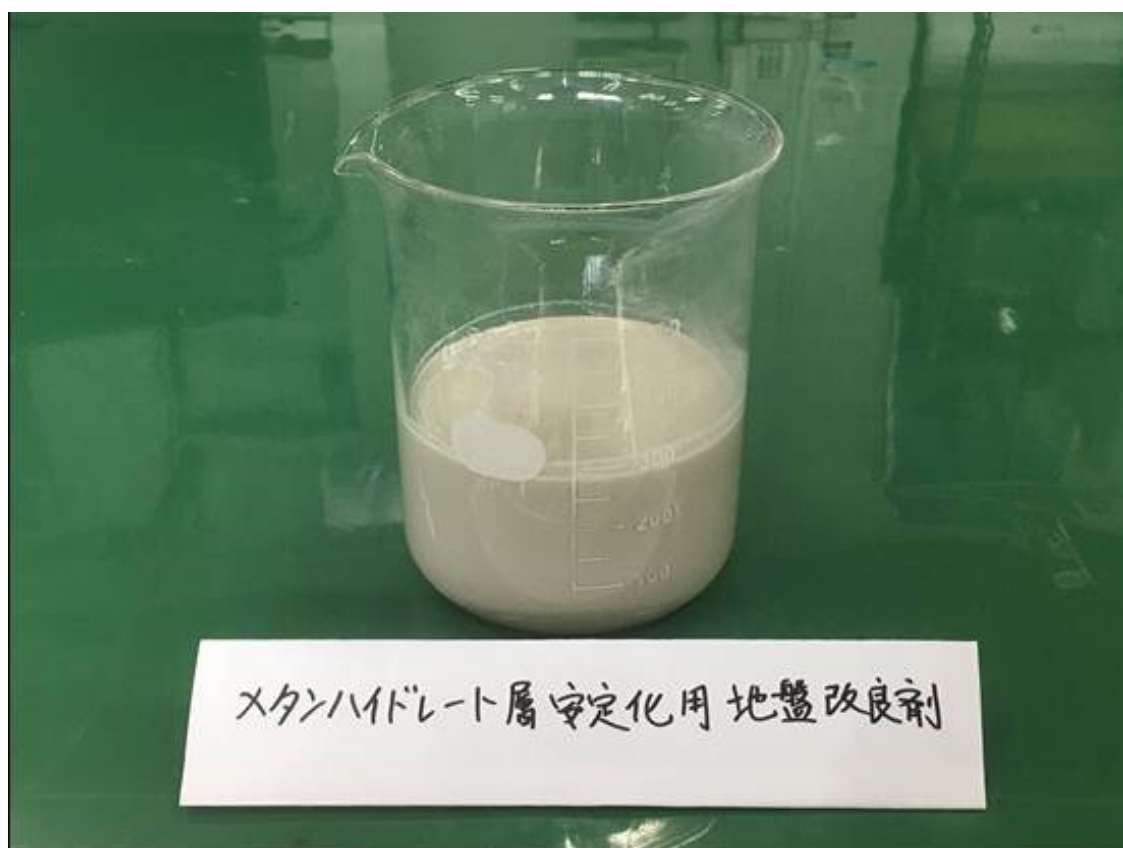


図 5-9 本研究で用いた地盤改良剤

なお、セメント系地盤改良剤は、静止状態または微速流動状態になると粒子の凝集が始まる性質を有する。その結果、注入フロントの拡大により先端の流動速度が低下し、そこで孔隙の閉塞が発生す

るため、それ以上注入できなくなる。これは、セメント系地盤改良剤による改良体の作成範囲の限界である。実際のフィールド作業では、地上・船上の施設から MH 層までは 1000m 以上のチュービングを通して圧送すると想定されるが、改良剤の（配合から注入までの）待機時間を極力抑えるよう配慮する必要がある。

5.5 評価指標の選定と測定

本研究は、提案手法が MH 層における適用性、及び MH の長期安定生産に寄与する有望性を検証することを目的としている。その大前提として、本来表層地盤を施工対象とする地盤改良材は、MH 層に近い粒径を有する砂層（水層）に注入でき、かつ浸透性をある程度に維持しながら出砂を防げることである。そのうえ、1) 薬剤注入時、2) 養生期間中、および 3) 水・ガスの生産性または生産時の挙動を計測、評価する必要がある。

1) 薬剤注入時の挙動を評価するには、a) 薬剤注入の可否と、b) 薬剤の注入に伴う MH 層の変化を評価する必要がある。a については、薬剤の注入レートを用いて説明できる。一方、b に関しては、主に砂粒子の動き（水槽実験の場合）や、薬剤注入レートの変化（コア注入実験）と分解ガスの発生レート（i-BH の場合）を用いて説明できる。

2) 養生期間中の挙動を評価するには、a) 改良剤による残存ハイドレートの平衡への影響、b) 改良剤の水和反応による放熱がハイドレート層への影響、および c) 改良剤による水和反応の進行に伴う改良体の物性の変化等を評価する必要がある。a と b については、薬剤注入後・養生期間中にわたる分解ガスの発生レートと累積量、および供試体の中心温度の推移を用いて評価できる。一方、c に関しては、養生期間に対する供試体の物性を計測し、浸透率の低下や強度の向上の具合を基に評価できる。

3) 水・ガスの生産性または生産時の挙動を評価するには、a) 改良体を透過しての流体の生産具合、b) 砂の流出有無、および c) 強減圧に対する改良体の耐性等を評価する必要がある。a と b については、水槽実験での水や砂の産出具合を用いて定性評価できる。一方、a と c に関しては、供試体の浸透率や強度を用いて定量的にも評価できる。強度については、地層の条件を十分に再現できる三軸圧縮試験の方がより正確に評価できるが、1) 本実験では薬剤の注入・養生圧力が常圧に近いこと、2) 現場では三軸試験よりも一軸試験の方が速やかで大量のデータを容易に取得できること、および 3) 筆者の地元の油田で使われる在来型油井向けの防砂剤の性能表

記には一軸圧縮試験値を用いられたことから、本研究においては一軸圧縮強度を採用した。なお、浸透率や一軸圧縮強度といった物性値は、水・ガスの生産に伴う内部浸食や経年劣化により経時変化すると予想されるが、本研究では評価試験に所要する時間の都合上、このような経年変化を対象外（今後の課題）とした。

また、上記の研究目的を達成するためには、模擬ハイドレート供試体の作成手法の確立や量産化の実現が必要である。特に、文献調査において前例が見当たらない i-BH 供試体を正確に、均質に、かつ効率良く作成するためには、i-BH 生成の誘導時間、経時生成率や温度変化といった生成特性を解明した上、その飽和率を計画値に合わせて正確に制御する手法を検討しなければならない。

以上のことから、本研究では、各ステージにおける評価指標とその測定手法を表 5-5 にまとめた。

表 5-5 各ステージにおける評価指標の一覧

| ステージ | 評価目的 | 評価指標 |
|---------------------------------|--------------|---|
| 予備実験： 水槽実験 | 注入性 | 薬剤の注入可否 |
| | 生産性 | 水の生産レート |
| | 出砂防止効果 | 砂の生産レート |
| 予備実験： i-BH の生成特性と 供試体の量産化 | i-BH 生成特性 | i-BH の誘導時間，経時生成率，温度変化 |
| | i-BH 供試体の量産化 | 排水具合に対する残水飽和率（密度から推定）と実際の i-BH 生成率（ガス回収量から推定） |
| 本実験： コア実験 | 注入性 | 薬剤の注入レートと累積量，乾燥密度 |
| | 注入時の挙動 | 分解ガスの発生レートと累積量（i-BH の場合），温度変化 |
| | 養生中の挙動 | 分解ガスの発生レートと累積量（i-BH の場合），温度変化 |
| | 固結可否 | 目視，触感（定性） 一軸圧縮強度（定量） |
| | 生産性 | TH/i-BH を含んだ状態での有効浸透率 TH/i-BH が分解後の有効浸透率 |
| | 流体生産時の挙動* | 水，ガス，および砂の生産レート（i-BH の場合） |
| | 改良剤含有量 | 乾燥密度 |
| | 出砂防止効果 | 一軸圧縮強度 |

※養生期間中に i-BH が全部分解した場合は実施しない。

5.6 実験装置の設計，製作，運用

実験装置（群）の設計と製作は，前述 5.1～5.5 に示す設計思想，材料，薬品，及び評価指標といったニーズを基に行った．本節には，その共通の設計要件と，各実験装置の設計，製作，特徴および運用方法（手順）について説明する．

5.6.1 共通設計要件

本研究の目的に達成するためには，まず，水層，砂供試体，TH または i-BH 供試体を作製し，そこに薬剤を注入することで，MH 層安定化手法の有効性を検証する機能を有する必要がある．また，この検証にあたり，実験の精度を保ちながら確実に動作し，トラブルなく実験を行うための信頼性が求められる．さらに，一定圧力を有する可燃性ガスを使用するため，実験装置には高い安全性が求められる．最後に，限られたリソースを最大限に活用し，できるだけ多くの成果を送り出すためには，実験装置に経済性も求められる．この 4 つの基本性能を満たすための設計要件を図 5-10 に示す．

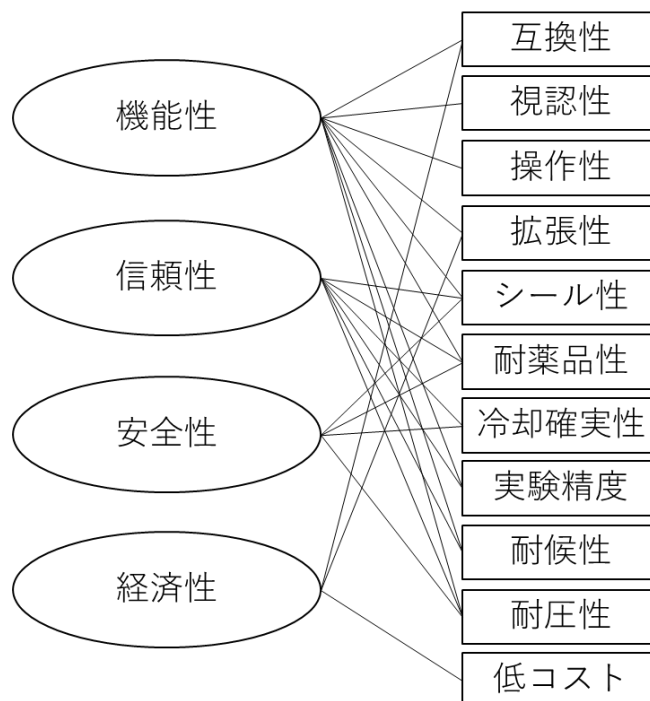


図 5-10 実験装置に求める基本性能とその設計要件

< 既存からの互換性 >

石油工学では、直径 30mm 前後のコアを測定することが多く、実験室に既設された浸透率計測装置もこの寸法を想定し製作されている。そのため、本研究における円柱型供試体の直径を 30mm と定めた。また、一軸圧縮強度等を求める力学試験では、長径比=2 前後の供試体を用いることが一般的であるため、供試体の成形時に余裕を持たせるよう、供試体の長さを 70mm と定めた。

< 視認性 >

過去の MH 産出試験では、出砂が発生したと推定された地層深度に坑内カメラを降下したが、坑内流体の濁りや機材の回収困難といった都合から、出砂の状況を撮影できなかった。また、過去の室内試験では、人工模擬 MH 試料や保圧コアの解析が行われたが、耐圧セルの材質の関係から、CT スキャンを行ったものの直接には目視できなかった。一方、本実験では、低圧で生成・維持できる模擬ハイドレートを採用することで、コアセルをはじめとする主要部品の耐圧性に関する条件が緩和され、材質を広い範囲で選択できるようになった。そのため、注入や生産時における供試体の挙動を直接に観察、撮影できるように、コアセルの材質にアクリル樹脂や透明塩化ビニールを採用した。なお、上記の 2 材料は、屈折率がそれぞれ 1.49, 1.52~1.55 であるため、主に塩水を用いる冷却液（屈折率 1.33~1.38）の中でも容易に目視で作業できる。

< 操作性 >

本研究では、一部装置の脱着作業を低温の冷却液の中で行うため、凍傷防止の観点から、作業時間の短縮が求められる。そのため、装置のシール性を保てる前提で、水中操作が必要とされる上部フランジ部では四角 4 点固定から対角 2 点固定へと、JIS-M3 ボルトから 25mmC クランプへと変更し、防寒手袋を着用時の操作性の向上や作業時間の短縮を図った。また、配管類の継手部も、常圧（模擬水層、TH 試料）では直結の耐寒チューブ採用し、低圧（模擬 i-BH 試料）では 6mm のワンタッチ継手に統一した。

< 拡張性 >

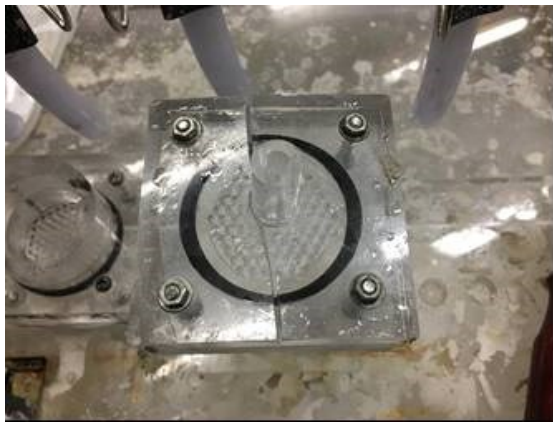
本研究は、地盤改良剤による MH 層の安定化手法の有望性を検証することを目的としているが、同手法を実用させるためには更なる研究が必要である。すなわち、本研究の実験装置・システムは、今後の年単位の研究を想定して設計する必要がある。そのため、本実験装置・システムの設計では、ボルト・ナット類、継手類といった汎用部品や、フランジなどの取り付け部等の設計を統一することで、異なる機能を有する測定キット ASSY を自由に付け替えることを可能にした。

< シール性 >

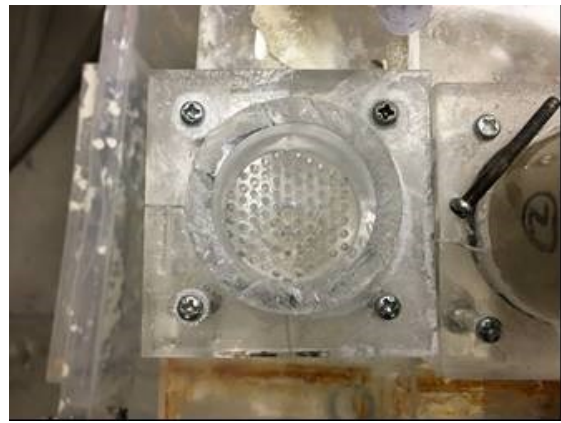
流体を扱う実験装置には高いシール性が求められる。特に、可燃性を有するイソブタンガスの漏れは、爆発事故を引き起こすリスクがある。また、微量のガス漏れでも、圧力、流量データに影響を与えるほか、ガスボンベの温度、すなわちガス供給圧力の低下を起こし、実験結果の正確性に影響を与える可能性がある。そのため、本研究における実験装置の設計、製作には、接合部に耐候性、耐薬品性が優れたフッ素ゴム Oリングやシリコングリースを採用した(後述)。

< 耐薬品性 >

アクリルをはじめとする透明樹脂は、機械強度や加工性が高いものの耐薬品性が弱いものが多い。一方、本実験では、珪砂や塩水のほか、模擬ハイドレートの生成物質である TBAB とイソブタン(気体及び液化ガス)、アルカリ性の改良剤とその配合剤、促進剤等を使用するため、これらの材料または薬品への耐性が求められる。特に、TBAB に関しては、既存の耐薬品性シートに記載がなく、また樹脂メーカーや納入業者からも知見を得られなかったことから、当方により耐薬品試験を行った(図 5-11)。



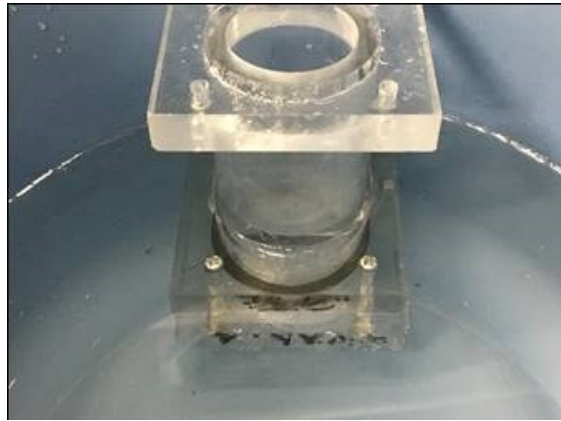
(a)



(b)



(c)



(d)

図 5-11 TBAB 溶液の浸食による部品破断
および材質選択のための耐薬品試験

- a-試運転時に破断したコアセルのキャップ
- b-試験片：アクリル樹脂（押出）
- c-試験片：アクリル樹脂（キャスト）
- d-試験片：透明硬質塩化ビニール樹脂

耐薬品試験は、耐圧部品の材質候補となる 1) アクリル樹脂（押出）、2) アクリル樹脂（キャスト）、3) 透明硬質塩化ビニール樹脂（硬質 PVC）の 3 種類を用いてコアセルのフランジとそのキャップに加工し、JIS-M3 ボルトにより実際の実験条件と同程度の締め付けトルクにより組み立てた。その後、上記サンプルを TBAB の高濃度溶液（40w%）に浸し、部品の変色、変形、侵食、破断の有無とその経過時間を記録した。その結果を表 5-6 に示す。

表 5-6 TBAB 溶液への耐薬品試験の結果一覧

| 材質 | 変色 | 変形 | 侵食 | 破断 | 左記変化が生じる までの経過時間 | 備考 |
|------------------|----|----|----|----|---------------------|-----------------|
| アクリル樹脂 (押出) | なし | なし | あり | あり | 10min 以内 | 大きな破断音を伴った |
| アクリル樹脂 (キャスト) | なし | なし | なし | なし | — | 溶液の拭き取りが困難 |
| 硬質 PVC | なし | なし | なし | なし | — | 溶液が容易に 流れ落ちた |

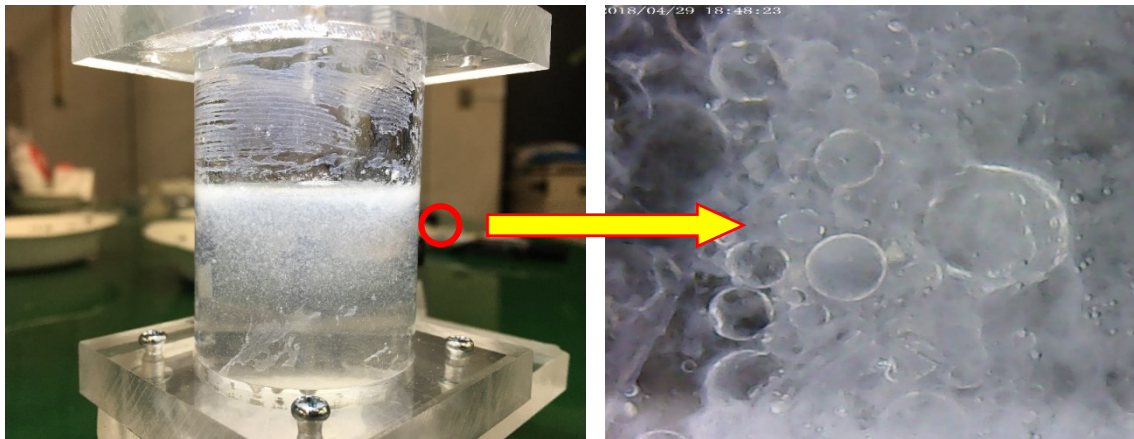
試験の結果，もっとも安価なアクリル樹脂（押出）は，10min 以内に大きな破裂音を伴い破断し，応力解消後にもひび割れの出現と拡大を確認した．一方，アクリル樹脂（キャスト）と硬質 PVC は，48 時間経過後にも変色や破壊が一切生じておらず，部品としての健全性を保っていたことが明らかになった．さらに，アクリル樹脂（キャスト）と硬質 PVC を溶液から取り出して観察した結果，アクリル樹脂（キャスト）製部品の表面に付着した溶液を拭き取ることが難しく，また乾燥後に TBAB の結晶と思われる白い固形物が残った．それに対し，硬質 PVC の場合は部品表面の溶液が綺麗に流れ落ちたことから，両者の TBAB 溶液に対する濡れ性が大きく異なることが分かった．即ち，硬質 PVC の方が耐薬品性に優れることが分かる．しかし，硬質 PVC は可視光の透過率が低く，コアセル内の挙動の観察には不利であることから，コアセルの胴体部に透明度が高いアクリル樹脂（キャスト）を，フランジ部や上下キャップには耐薬品性が優れた硬質 PVC を採用した．なお，両者の接合部には，それぞれの材質を溶解できる有機溶剤を比率 1：1 で調和したものにより溶着した．その他，多孔板などの部品では，加工時の切削性等を考慮し，上記 2 材質から適宜選択した．

また，実験で使用するグリースについても，TBAB 溶液への耐薬品性を考慮し選定を行った（表 5-7）．調達性の面からは，汎用ホワイトグリース A，B およびシリコングリースまで絞った．しかし，既存文献では TBAB への耐薬品性は不明であることから，当方により耐薬品試験を行った（図 5-12）．試験では，対象となるグリー

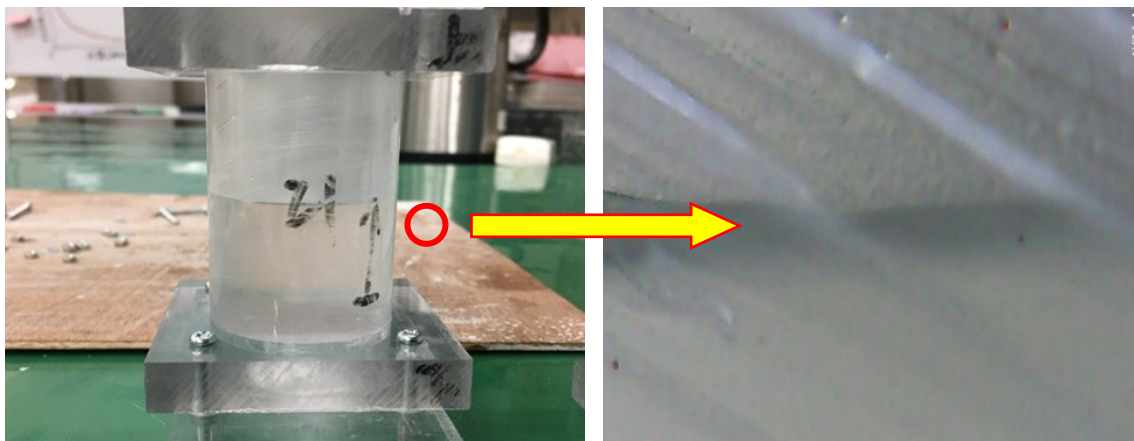
スをコアセルの内壁に塗布し，実際の実験で用いられる TBAB 溶液をコアセルの半分まで注ぐ．その後，溶液との接触有無によるグリース薄層の性状を観察することで，TBAB 溶液への耐薬品性を評価した．試験の結果，汎用ホワイトグリース両種類は，TBAB 溶液と接触した直後に浸食が確認され，コアセルを軽く揺らしただけで薄層の剥離が見られた．また，液面付近に白い層が現れ，顕微鏡観察ではグリースの乳化と思われる液滴が集積したことを確認した．一方，シリコングリースの塗層は，TBAB 溶液に浸した状態で 48 時間が経ても浸食や乳化が確認されず，振動試験（1000gal@9Hz / 10min）においても薄層の剥離が生じなかったことから，TBAB 溶液に十分な耐薬品性を有することを確認した．また，樹脂類への浸食性の面においてもシリコングリースの方が優位であることから，本実験では原則，シリコングリースを使用することにした．

表 5-7 選定対象となるグリースとその試験結果一覧

| 種類 | 溶解／乳化 | 浸食／剥離 | 左記変化が生じるまでの経過時間 |
|------------|-------|-------|-----------------|
| ホワイトグリース A | 有り | 有り | 1min 以内 |
| ホワイトグリース B | 有り | 有り | 1min 以内 |
| シリコングリース | なし | なし | — |



(a)



(b)

図 5-12 TBAB 溶液への耐薬品性を有するグリースの選定試験
 a-TBAB 溶液によりエマルジョン化したホワイトグリース
 b-TBAB による影響を受けず，健全性を保ったシリコングリース

< 冷却確実性 >

模擬ハイドレート試料の作成・維持および供試体の養生では，実験装置の冷却が必要である．特に，TBAB 溶液から TH を作成する際は，温度の変化が TH の飽和率に大きな影響を与える．また，i-BH を用いた実験では，装置各部の温度の不等変化が，供試体や圧力計の内部に液化ガスが生成する等のトラブルを引き起こすリス

クがあるため、均等かつ確実な冷却が求められる。そのため、本研究では水冷式を採用し、実験システム一式を高塩分冷却水の中に浸したまま稼働させた。その主な理由は、空冷式と比べ、水冷式は以下の利点があるからである。

- ・扉が開放時でも、冷却液の外部への流出や外部空気との混ざり合いがなく、冷却を確実にこなせること。
- ・冷却液の熱容量が大きく、扉を長時間に開放して庫内作業を行う場合や、一気に大量の供試体を庫内に入れた場合においても、冷却液の温度の上昇幅を小さく抑えられること。

< 実験精度 >

模擬ハイドレート試料の孔隙率、飽和率、浸透率、密度や強度をといた物性値を計算するには、供試体の寸法や質量、すなわちコアセルをはじめとする実験部品の寸法や薬品の質量を正確に計測する必要がある。また、実験の再現性を求めるためにも、実験装置各所や交換部品に高い加工精度が求められ、その公差を一定値以内に収める必要がある（図 5-13）。本研究では、実験装置の部品を製作する工作機械の精度や、計測道具（ノギス・電子天平、ロードセル、他）の性能を基に、本実験の精度を以下のように定めた（表 5-8）。また、計測機器の選定や入れ替えの際に、精度が保証される既設のものを用いて精度試験や校正を行った（図 5-14）。さらに、実験の誤差を抑えるために、特段の説明がない限り、同一条件の供試体を 3 本以上作成・計測し、その平均値を結果として採用した。

表 5-8 本実験における各物理量の精度範囲一覧

| 物理量 | 計測精度 | 加工精度 制御精度 | 計測・加工・制御機器 |
|---------------------------------|--------|--------------|-------------------------|
| 寸法 ^{※1} (長さ) | 0.1mm | 0.1mm | 定規・L型定規 |
| 寸法 ^{※2} (長さ・ 直径・厚み) | 0.02mm | 0.02mm | ノギス, 旋盤, フライス盤 |
| 質量 | 0.01g | 0.01g | 電子天平 |
| 体積 (配合溶液) | 0.1mL | 0.1mL | メスシリンダー (メーカー製) |
| 体積 (ガス・回収液体) | 1mL | — | 耐圧メスシリンダー (自作) |
| 温度 | 0.1℃ | 0.1℃ | アルコール温度計・ デジタル温度センサー |
| 温度 (室温養生時のみ) | 0.1℃ | 1℃ | 実験室の空調システム |
| 圧力 | 0.1kPa | — | 機械式圧力計・ デジタル圧力センサー |
| 圧縮力 | 0.5N | 0.5N | 万能試験機 (ロードセル) |

※1: 水槽 (断面モデル) 実験の場合

※2: コア (円柱型供試体) 実験の場合



図 5-13 旋盤によるコアセル胴体の開口部の加工風景

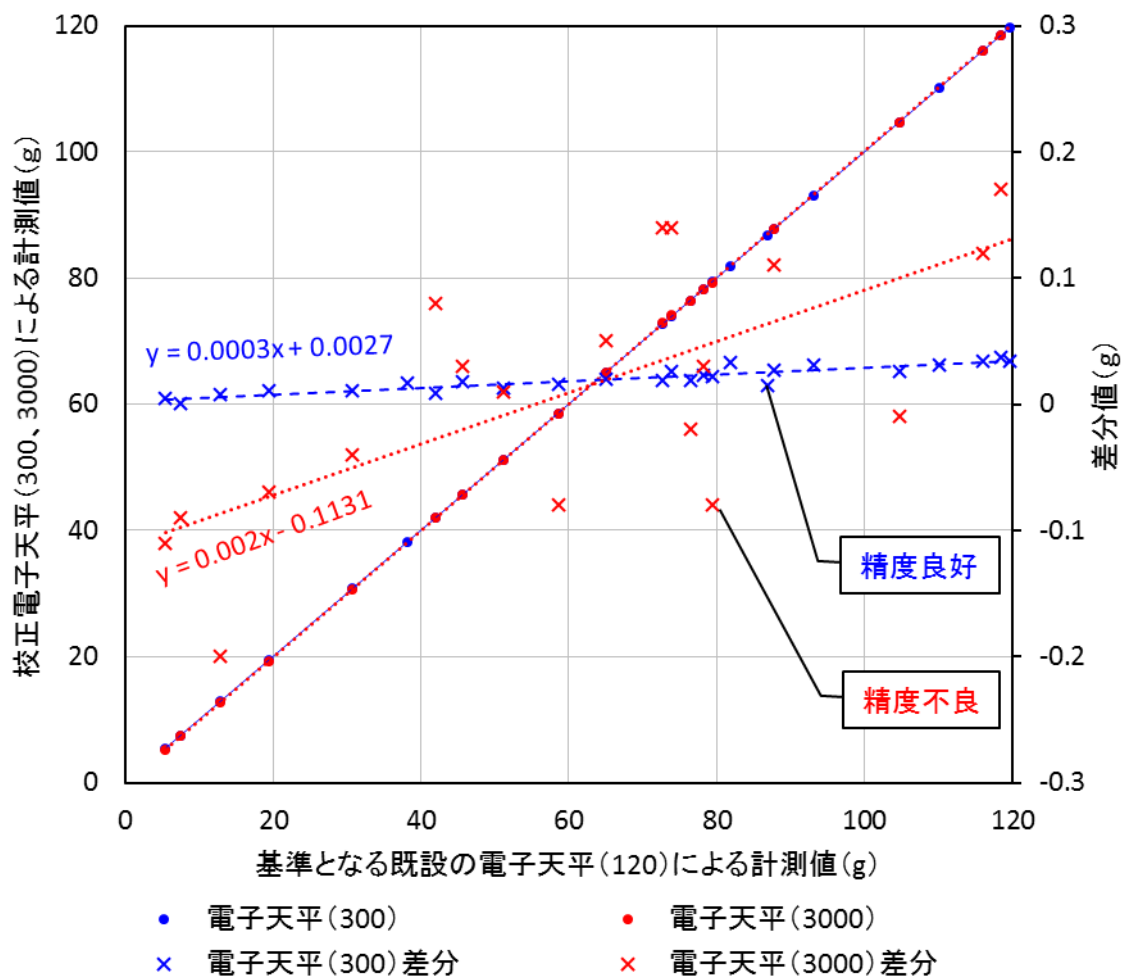


図 5-14 本実験で使用した電子天平（300型）の精度検証結果

< 耐候性 >

模擬ハイドレートを用いた実験は比較的低温条件で実施される。例えば、i-BHを維持するには2℃以下に維持する必要があるが、i-BHの生成に必要な氷の核を作成するには0℃以下まで冷却する必要がある。その実験効率を考慮し、i-BHの生成温度を低めに設定すると良いが、樹脂材料を多用する実験装置は脆弱化する可能性がある。また、過度の低温は、フランジ結合部やバルブ類等にあるゴムパッキンの硬化を起し、装置のシール性の低下に繋がるリスクも想定される。そのため、本実験では、これらのシール部材の耐候性に合わせ、装置の最低運用温度を-5℃と定めた。ただし、構造上シール部材に負荷が掛からない新3号機を用いた一部の急速冷凍

では、最低-20℃まで運用可とした。

< 耐圧性 >

実験装置は、実験の目的を達成するために以下の耐圧性を満たす必要がある。

- (1) 実験温度において、模擬ハイドレート生成と維持に必要な圧力（実験圧力）を十分に耐え、かつ、実験の結果に影響を与える程の膨張または伸長を発生しないこと。
- (2) 地震などによる電源喪失に備え、真夏日の室温条件において内部圧力による塑性変形または破壊が生じないこと。

上記の耐圧性を満たす肉厚については、式 5-7 及び式 5-8 により決めることができる（高压ガス保安法令関係例示基準資料集）。

(ア) 肉厚計算式：内径に対する外径の比が 1.5 以下の場合：

$$t = \frac{P D_o}{2 \sigma a \eta + 0.8 P} \quad (\text{式 5-7})$$

(イ) 肉厚計算式：内径に対する外径の比が 1.5 以上の場合：

$$t = \frac{D_o}{2} \left[1 - \sqrt{\frac{\sigma a \eta - P}{\sigma a \eta + P}} \right] \quad (\text{式 5-8})$$

なお、 t = 管の最小厚さ (mm)、 D_o = 管の外径 (mm)、 P = 設計圧力 (MPa)、 σa = 設計温度における材料の許容引張応力 (N/mm²)、 η = 溶接継手の効率。ただし、本実験では溶接箇所がないため、 $\eta = 1$ とする。

本実験では、真夏日の室温 = 40℃時のイソブタンの蒸気圧 (531kPa) を想定し、安全係数を 10 とする場合には、コアセルの肉厚を 2.1mm 以上に設ける必要があることが分かった。なお、実際の設計では、1) 薬品に晒されるコアセルの劣化によりひび割れが生じ、強度が低下する可能性や、2) 今後の実験の高压化（高压ガス保安法により 1MPa 未満）を見据えたコアセルの汎用性の観点から、コアセルの肉厚を 5mm とした。

一方、胴体の膨張及び伸長は、以下の式 5-10 及び式 5-12 により

算出できる．

$$\sigma_c =$$

$$\frac{Pd}{2T}$$

(式 5-9)

$$\lambda_d = \frac{\lambda_c}{\pi} = \frac{C\varepsilon}{\pi} = d\varepsilon = d\frac{\sigma}{E}$$

(式 5-10)

$$\sigma_h = \frac{F}{A_c} = \frac{PA_d}{A_c} = P \frac{(\frac{d}{2})^2\pi}{(\frac{d+2T}{2})^2\pi - (\frac{d}{2})^2\pi} = P \frac{d^2}{(d+2T)^2 - d^2}$$

(式 5-11)

$$\lambda_h = h\varepsilon = h\frac{\sigma}{E}$$

(式 5-12)

なお， σ_c ＝胴体縦断面が受ける膨張応力 (Pa)， P ＝コアセルの運用圧力 (Pa)， d ＝コアセルの内径 (mm)， T ＝コアセル胴体の肉厚 (mm)， λ_d ＝コアセル内径の変位量 (mm)， λ_c ＝コアセル円周上の変位量 (mm)， C ＝円周本来の長さ (mm)， ε ＝ひずみ， d ＝コアセルの内径， E ＝ヤング率 (Pa)， σ_h ＝胴体横断面が受ける引っ張り応力 (Pa)， F ＝コアセル軸方向における引っ張り荷重 (N)， A_c ＝コアセル胴体の横断面積 (mm²)， A_d ＝コアセルの内径による断面積，すなわち上下キャップにガス圧力が作用する有効面積， λ_h ＝コアセルの軸方向における変位量 (mm)， h ＝コアセル本来の高さ (mm)．

式 5-10 によれば，コアセル胴体部の肉厚＝5mm，実験圧力＝157kPa (0℃におけるイソブタンの蒸気圧) の場合には，常圧時と比べ内径の変位量が 0.0079mm であり，内壁にグリースを塗布すれば十分なシール性を保つことができると考える．また，コアセルの軸方向における伸長もわずか 0.0079mm であり，実験の結果に影響を与える可能性が極めて低いと考える．

< 低コスト >

限られた予算でより多くの成果を上げるためには、実験の低コスト化が不可欠である。そのため、本研究では、新規調達部品の共通化、内製化率の向上のほか、中古実験装置や測定器具のリニューアルや、破損した部品を材料としての再利用にも力を入れている。特に、本研究の第2段階、すなわち i-BH を用いた検証実験を設計した時期には、新型コロナウイルスによる影響で部品や消耗材の調達が困難であった。その際、調達先の多様化の観点から、イソブタンガスには市販の寒冷地用の CD 缶燃料ガスを採用することで、調達コストの大幅な（90%以上の）削減を実現した。

5.6.2 1号機

1号機は、坑井から地層へと延びる垂直断面をイメージした模擬砂層モデルを作成し、そこに薬剤注入・養生・模擬生産を行うための実験装置である。その構成を図5-15に示す。装置の中心には、幅450mm×高さ300mm×奥行き10mmの薄型水槽⑨を設け、そこに珪砂を水中落下法により充填し、模擬砂層⑦を作製できる。また、ハンマーにより振動を与え、所期の孔隙率になるまで砂層の高さを調整できる。砂層の上部に粘土（パテ）⑥を詰め、帽岩層としてシールの役割を果たさせる。水槽の右側には、生産井を模擬した穴開きのアクリルパイプ⑩を設置し、改良剤の注入または水の生産を可能にする。一方、水槽の左側に水補給装置①を設置しており、水圧の維持と生産水の供給を果たす。その下にある三方弁から分岐管路を設け、メスシリンダーを用いて改良剤の注入レートと注入量を計測できる。さらに、模擬坑井⑩から生産した水を計測装置⑪により回収し、水と砂を分離後にそれぞれの質量を計測することで、生産レートと生産量を求めることができる。なお、水圧による水槽の変形を抑えるために、水槽の表裏両面に補強筋を設けた。同装置は主に予備実験に使用された。

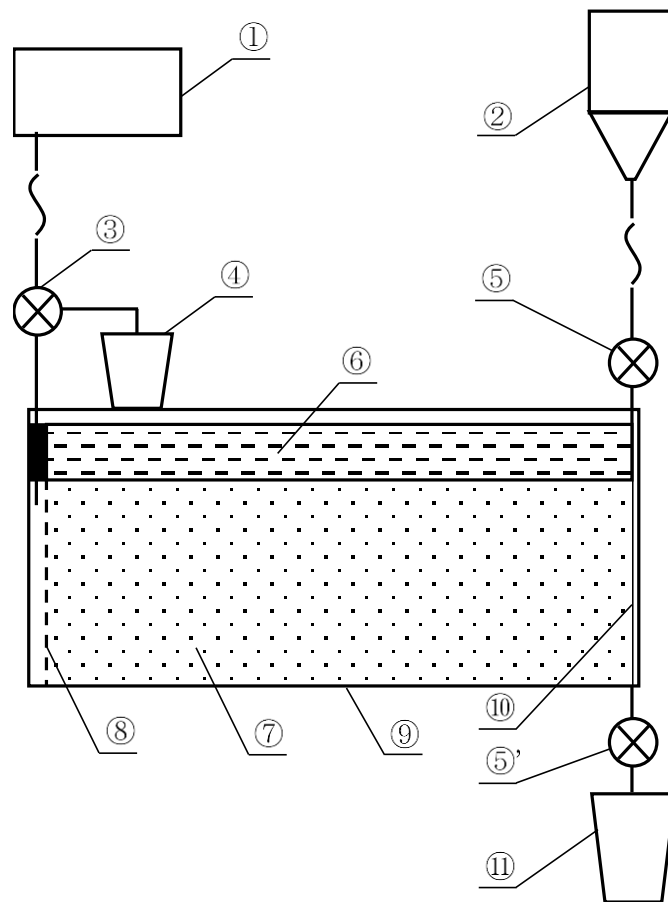


図 5-15 1号機（模擬砂層モデル実験装置）のイメージ

①定圧水補給装置，②改良剤タンクまたは水タンク，③三方弁，④メスシリンダー又は類似した水計量装置，⑤バルブ，⑥粘土シール層，⑦砂層，⑧水補給スクリーン，⑨アクリル水槽，⑩生産井（穴開きパイプ），⑪生産水／砂計測装置

5.6.3 2号機

2号機は1号機の改良型で、模擬砂層モデルを格納する水槽部分の剛性やメンテナンス性を向上したものである。薄型水槽は、実験時に十数 kPa の水圧を受けるため、平板の場合は数 mm 程度の変形（膨張）が生じる。その変形を抑えるために、水槽の亚克力板の肉厚を 5mm から 10mm に変更し、水平方向に補強筋 2本を設けた。また、水槽の表側を開閉可能な構造にし、外周を JIS-M3 ボルトにより固定させる。これにより、固化体（改良体）の取り出しや清掃を容易にできる。さらに、ボルト止め部を液体パッキンによりシールすることで、複雑な形状と良好なシール性を両立することができた（図 5-16）。同装置は、水槽部分以外が 1号機と大きく変わっておらず、主に同機の後継機種として予備実験に使用された。

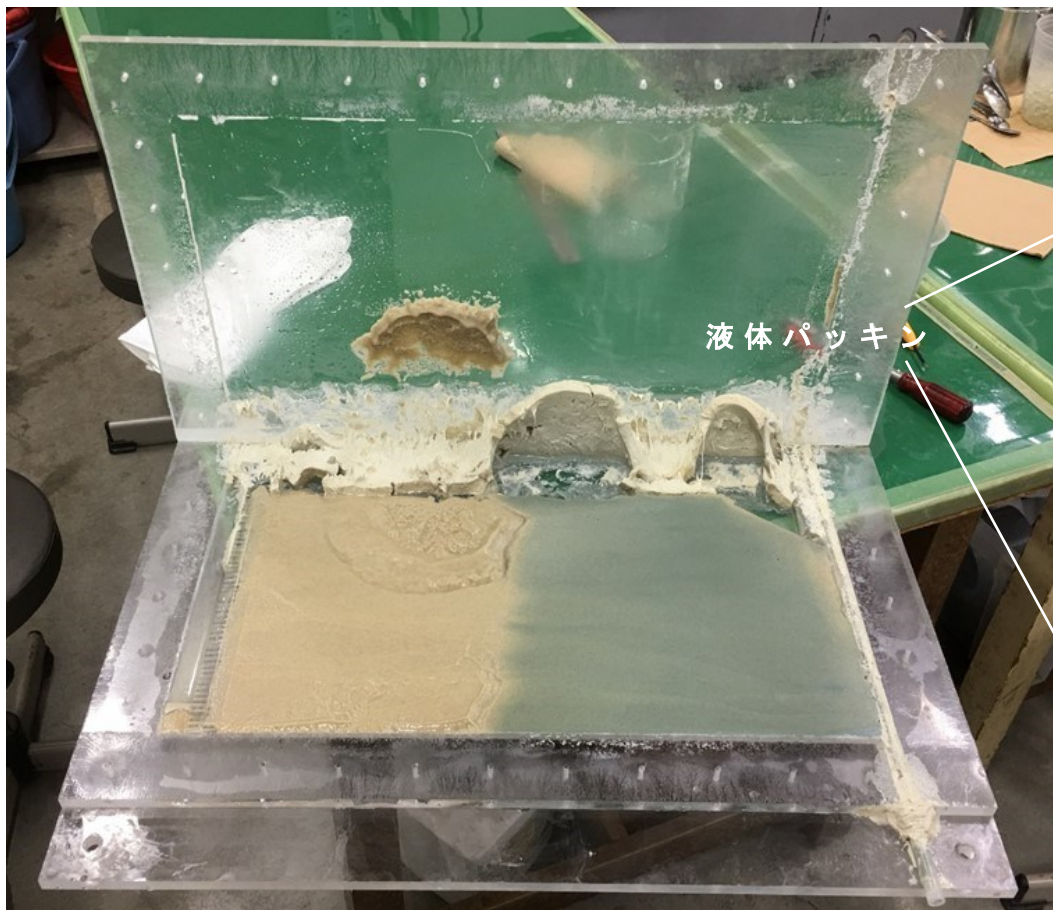


図 5-16 2号機の亚克力製水槽（初期型）

※中期型・後期型では外板に補強構造を追加

5.6.4 3号機

3号機は、主に TH を含む円柱型供試体を作製、注入、養生、測定を行うための定量実験装置であり、架台、コアセル、配管類、測定キット等から構成される。コアセルは、耐薬品性を有する塩ビおよびアクリル（キャスト）により製作され、水中落下法により直径 = 30mm、高さ = 70mm の円柱型供試体を作製できる（図 5-17）。その内壁にシリコングリースを塗布し、薬液または空気の漏れを防ぐ従来のゴムスリーブと同様な効果を持たせる。コアセルの両端に多孔板と濾過材を設け、砂をコアセル内に保持しつつ、薬剤の注入を可能とした。また、各コアセルの両端に配管チューブを取付け、その先はコモンレールと繋がっており、全セルに同一の圧力で改良剤を注入可能である（図 5-18）。チューブごとをクリップで挟むことにより、流路の開閉、すなわち薬液の注入順番とタイミングを制御できる。さらに、上流側の配管に冷却銅管を設けており、注入する薬剤または空気を供試体と同等な温度まで冷却できる。一方、下流側にはメスシリンダーを設置しており、薬液の注入量とそのレートを計測できる。上記の構成を温度制御された冷却水槽に浸すことで、供試体および注入流体の温度を制御可能にした。なお、実際の運用では、コアセルを架台から取り外し、異なる恒温槽で養生したり、個別に測定したりすることも可能である。



図 5-17 3号機のコアセルの組み立て CG 図（設計段階）

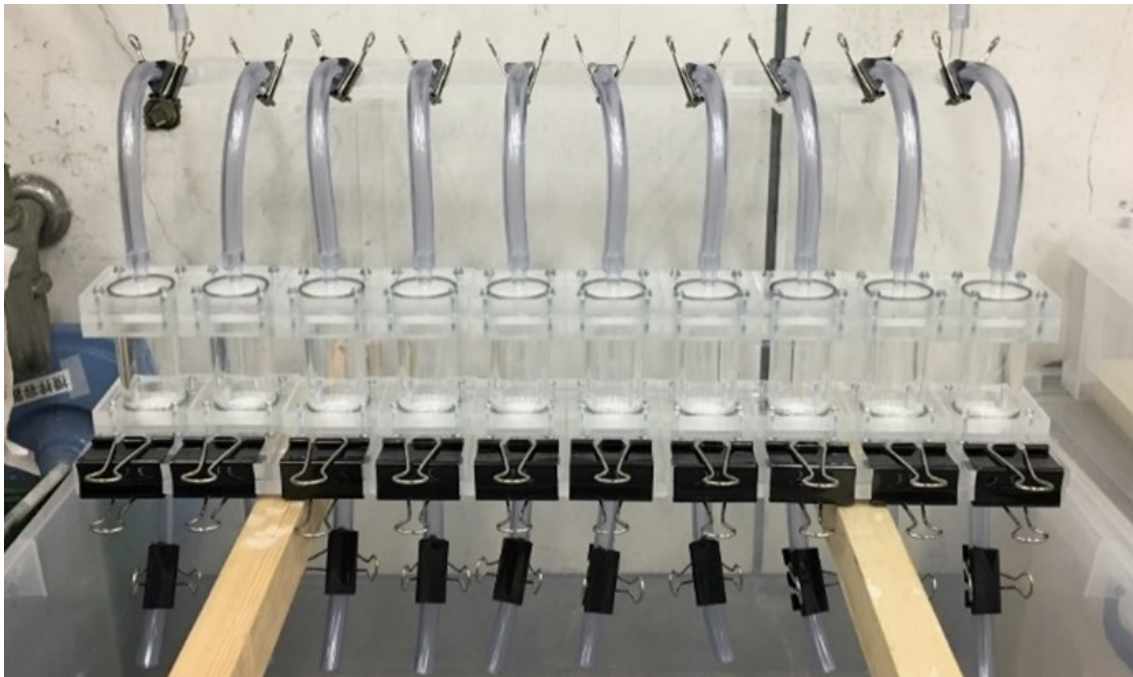


図 5-18 3号機のコアセル（フル・アクリル製の初期型）



図 5-19 3号機のコアセル
（耐薬品性を強化した後期型，製作段階）

また，製作の公差上，各コアセルの内寸にバラツキがあることを避けられない．その影響を避けるために，供試体を作製するための砂の計量や供試体の物性の計測では，表 5-8 を基に，供試体ごとに異なる内寸を用いて計算を行った．

表 5-8 3号機のコアセルの内寸一覧

| コアセル 番号 | 内径 (mm) | 断面積 (mm ²) | 高さ (mm) | 容積 (mL) | 孔隙率 = 38% 時の砂の質量 |
|------------|------------|---------------------------|------------|------------|---------------------|
| 1 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 2 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 3 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 4 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 5 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 6 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 7 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 8 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 9 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 10 | 30.20 | 7.16 | 70.00 | 50.14 | 80.52 |
| 11 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 12 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 13 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 14 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 15 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 16 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 17 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 18 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 19 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 20 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 | 79.19 |
| 21 | 29.90 | 7.02 | 70.00 | 49.15 | 78.93 |
| 22 | 29.90 | 7.02 | 70.00 | 49.15 | 78.93 |
| 23 | 29.90 | 7.02 | 70.00 | 49.15 | 78.93 |
| 24 | 29.90 | 7.02 | 70.00 | 49.15 | 78.93 |
| 25 | 29.90 | 7.02 | 70.00 | 49.15 | 78.93 |
| 26 | 29.85 | 7.00 | 70.00 | 48.99 | 78.66 |

本装置による円柱型 TH 供試体の作製方法を以下に説明する．まず，前記の式 (5-5) により，目標の TH 飽和率に所要の初期濃度を有する TBAB 水溶液を配合する．それを内壁にシリコングリースを塗布したコアセルに注ぎ，その中に珪砂を落下させる．落下させる砂の質量と供試体の寸法との関係を表 5-8 に示す．また，全て

の供試体を孔隙率 = 38% に統一させるために，コアセルに振動を与えて砂の高さを 70mm になるように調整する．その後，コアセルのフランジに濾過材，多孔板，Oリング，キャップを順次に取り付け，温度 = 3°C の冷却液に 24h 以上冷却し TH を生成させる．これにより，所期した TH 飽和率を有する円柱供試体を作製できる．なお，TH を含まない（TH 飽和率 = 0% の）一部の実験では，砂落下時の TBAB 溶液を純水に置き換え，冷却工程を省略した．

5.6.5 新 3 号機

新 3 号機は 3 号機の改良型であり，コアセルの両端にある多孔板とキャップの固定方式を従来のフランジボルト固定方式からワンタッチ方式に改良し，部品数の削減，低温環境での作業時間の短縮，および作業ミスの抑制を実現したものである（図 5-20）．その主な改良点を以下に示す．また，各コアセルの寸法を表 5-9 に示す．

- 1) キャップ部分に円周状と放射状の流路を加工することで，多孔板を介することなく，砂の保持および流体の均質な注入と排出を実現した．
- 2) 胴体部分の形状を単純化させることで，表面に付着した冷却液滴を容易に拭き取るようになり，質量計測時における冷却液滴による誤差を回避できる．これにより，供試体をコアセルから押し出さずに質量の計測を可能にした．
- 3) 胴体とキャップとの結合部にはテーパ形状を加工し，Oリングを適切に挟み込むことで強力な摩擦閉鎖を実現した．ただし，試作品の 37，38 番コアセルでは，比較的高い実験圧力への対応を想定し，摩擦閉鎖方式と回転閉鎖方式を併用した．
- 4) キャップにチューブを取り付けるためのアクリル管の寸法と根元の接合方式を改良し，経年劣化や繰り返し载荷による破断のリスクを大幅に減らした（論文執筆時点での破断数 = 0 件）．



図 5-20 新 3 号機のコアセル（解体状態）

表 5-9 新 3 号機のコアセルの内寸一覧

| コアセル番号 | 内径 (mm) | 断面積 (mm ²) | 高さ (mm) | 容積 (mL) | 孔隙率 = 38% 時の砂の質量 | 閉鎖方式 |
|--------|---------|------------------------|---------|---------|------------------|-------|
| 30 | 28.30 | 6.29 | 70.00 | 44.03 | 70.71 | 摩擦 |
| 31 | 28.15 | 6.31 | 70.00 | 43.57 | 69.96 | 摩擦 |
| 32 | 28.10 | 6.20 | 70.00 | 43.41 | 69.71 | 摩擦 |
| 33 | 28.20 | 6.25 | 70.00 | 43.72 | 70.21 | 摩擦 |
| 34 | 28.30 | 6.29 | 70.00 | 44.03 | 70.71 | 摩擦 |
| 35 | 28.15 | 6.22 | 70.00 | 43.57 | 69.96 | 摩擦 |
| 36 | 28.30 | 6.29 | 70.00 | 44.03 | 70.71 | 摩擦 |
| 37 | 30.05 | 7.09 | 70.00 | 49.65 | 79.72 | 摩擦+回転 |
| 38 | 29.85 | 7.00 | 70.00 | 48.99 | 78.66 | 摩擦+回転 |

5.6.6 4号機 A

4号機 Aは、i-BH 供試体の作成方法を確立させるために、i-BH の生成のための誘導時間や経過時間に対する生成率を解明するための実験装置である。同装置本来、液化ガスエマルジョンの作成装置の圧力容器として作られ、主に圧力容器、バルブ類、圧力計等から構成される(図 5-21)。それを活用し、i-BH の生成特性を解明する際の運用手順を以下に示す。

- 1) 圧力容器内 1 に氷粒子を装填し、ヘッド ASSY を取り付ける。
- 2) 真空ポンプ 3 により圧力容器内 1 内の空気を排出し、ボール弁 2 を閉める。
- 3) 燃料ガスの CD 缶 7 を上下逆転させ、変換アダプター 6 と注入バルブ 4 を介して液化ガスを圧力容器 1 に注入する。なお、本装置は、圧力容器の内容積は 100mL 以下であるため、高圧ガス保安法の規制対象外である。
- 4) 液化ガスを注入した装置本体を冷却液に浸し、i-BH の生成温度まで冷却、維持する。その間の容器内の温度変化を温度センサーとロガー 8 により記録できる。

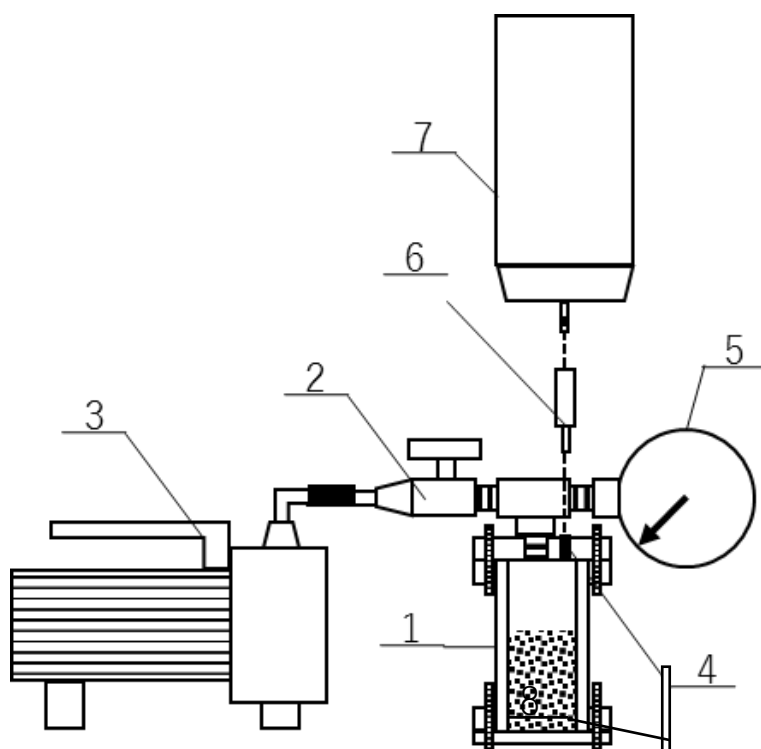


図 5-21 4号機 A のイメージ

1-透明圧力容器（3号機のコアセルも装着可）、2-ボール弁、3-真空ポンプ、4-液化ガス注入バルブ、5-圧力計、6-変換アダプター、7-寒冷地用 CD 缶燃料ガス（イソブタン 95%）、8-温度センサー。なお、部品 2、4、5 を集積したキャップ ASSY をヘッドとも呼ばれる。

5.6.7 4号機 B

4号機 Bは、i-BH 供試体の試作・量産、薬剤注入、養生、物性測定を行うための定量実験装置である。同機は、旧 3号機と類似した基本設計を有し、各コアセルにコモンレールを接続することで、同一圧力でガスを供給できる。コアセルとコモンレールの間には、ワンタッチ継手とボール弁を設け、コアセルを容易に脱着可能な構造にした。コアセルの寸法は、3号機、新 3号機と概ね一致し、後述する多連式供試体自動作成装置や定量排水装置に取り付けることができる。また、コアセル内に砂を装填せず、氷粒子のみを用いてもハイドレートを作製できるので、この場合は 4号機 Aと同様な役割を果たせる。一方、4号機 Bは、常圧で運用することが多い 3号機と比べて運用圧力が高く、グリースの粘性によるシールのみでは不十分なため、コアセルのフランジ部に円形の溝を加工し、多孔板との間にフッ素ゴム製の Oリングによりシールした。この変更に伴い、フランジ結合部の強度（肉厚）を確保するために、フランジ部の寸法、材質およびボルト孔の形状などに変更を加えた。さらに、コモンレールの上流側には、ワンタッチ継手を介して交換式ガスボンベまたはガスカートリッジを接続し、その圧力をデジタル圧力センサーにより確認できる。このような装置 1式を冷却液に浸すことで、ガスボンベ／カートリッジ、コアセル及びその配管類を i-BH の生成温度に均一に保つことができる。

なお、4号機 Bは製作の時期上、新型コロナウイルスの感染拡大によりアクリル材料が供給不足であった。その影響で、複数の調達先からの材料を使用せざるを得なかったため、コアセルの内径には大きなバラツキがあった。供試体の作製に所要する砂の質量や供試体の物性の計算に必要な寸法を把握するためには、各コアセルの内寸を表 5-10 にまとめた。

表 5-10 4号機 B のコアセルの内寸一覧

| コアセル 番号 | 内径 (mm) | 断面積 (mm ²) | 高さ (mm) | 容積 (mL) |
|------------|------------|---------------------------|------------|------------|
| 40 | 28.50 | 6.38 | 70.00 | 44.66 |
| 41 | 28.20 | 6.25 | 70.00 | 43.72 |
| 42 | 28.10 | 6.20 | 70.00 | 43.41 |
| 43 | 28.10 | 6.20 | 70.00 | 43.41 |
| 44 | 28.15 | 6.22 | 70.00 | 43.57 |
| 45 | 28.30 | 6.29 | 70.00 | 44.03 |
| 46 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 |
| 47 | 29.95 | 7.05 | 70.00 | 49.32 |
| 48 | 29.85 | 7.00 | 70.00 | 48.99 |
| 49 | 29.85 | 7.00 | 70.00 | 48.99 |
| 50 | 29.90 | 7.02 | 70.00 | 49.15 |

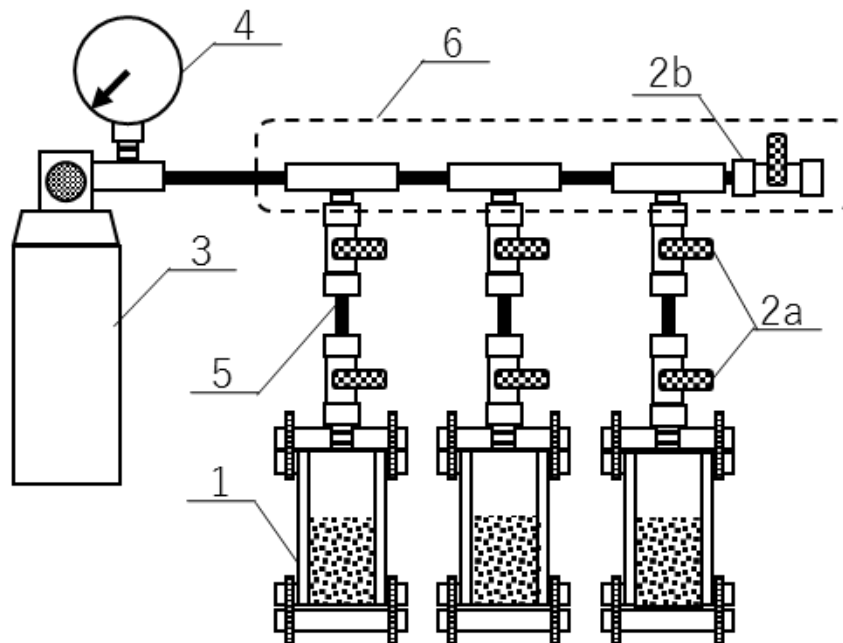


図 5-22 4号機 B のイメージ



図 5-23 4号機 B の実機写真

5.6.8 多連式供試体自動作成装置

水中落下法による砂供試体の作製では，供試体 1 本分の砂を落下させるために約 5min がかかる．また，砂を落下させると同時に，コアセルに振動を与えながら，すべての供試体を同一の高さになるまで調整する必要があるため，それなりの体力と集中力が求められる．しかし，改良体の物性の定量評価やその影響要素の解明には大量のデータを取得する必要があるため，そのため大量の供試体を作製しなければならない．作業工程の省力化，効率化のためには，同時に複数本の供試体を自動的に作成できる砂落下装置を製作した（図 5-24）．

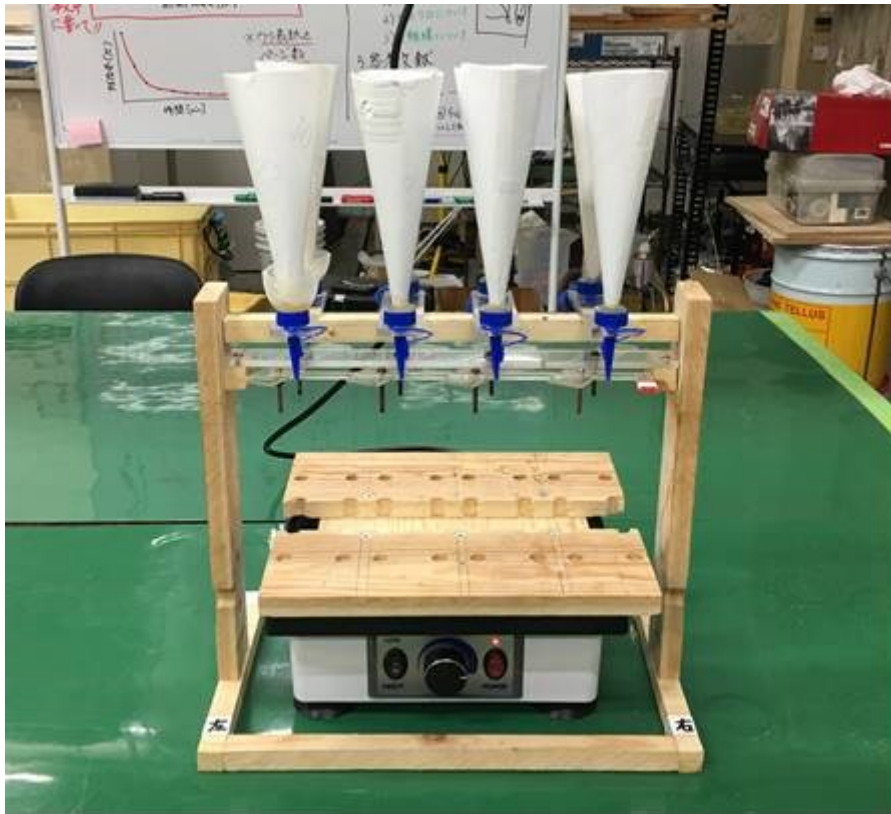
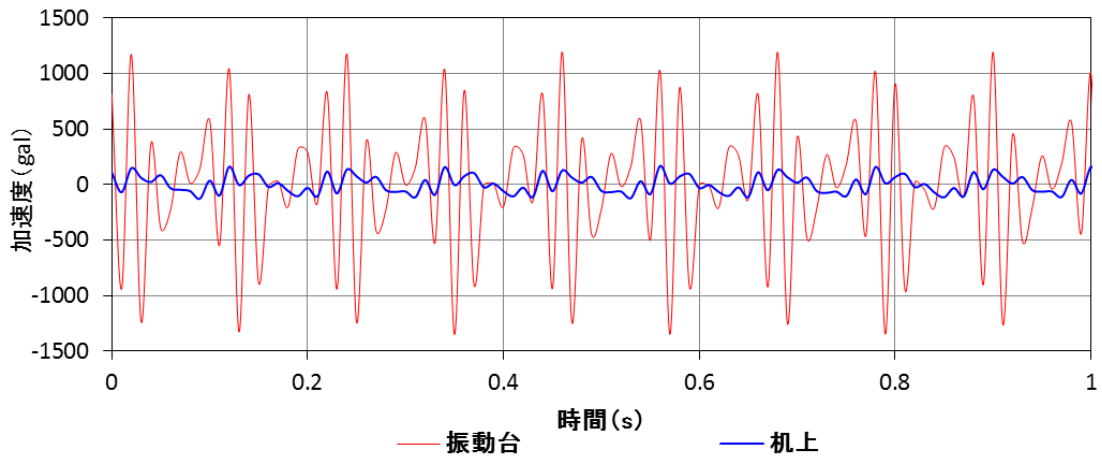


図 5-24 8 連装供試体自動作成装置（初期型）

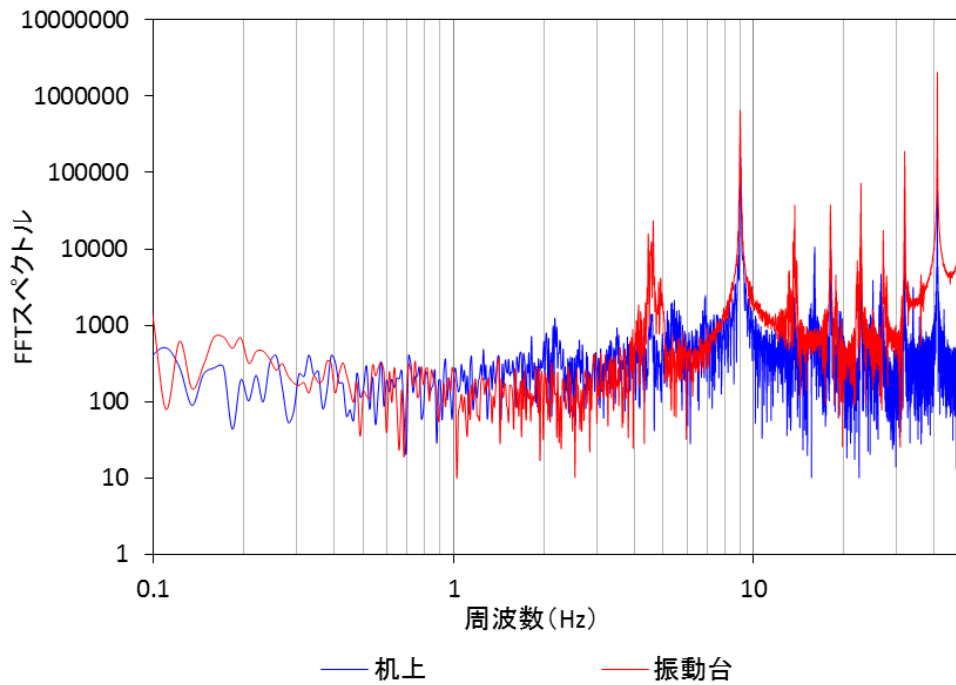
同装置は，上下方向に加振する振動台の上に複数本のコアセルを取り付ける治具を有し，その上方から砂を落下させる漏斗を設けた．漏斗の開口部には連結型の遮断板を設けており，レバーを押すこと

で全ての漏斗を同時に開放・遮断できる。また、振動台のダイヤルを回すことで、加振の加速度を 50～3000gal の範囲で調整できる。ただし、1000gal 以上では水または溶液が飛び散るため、実際の運用では 1000gal 以内に制限した。

さらに、中期・後期の改良型では、治具を付け替えることで、新 3 号機または 4 号機のコアセルにも対応可能である。また、実験台上にある精密機器や作成済みの供試体への影響を最小限に抑えるために、振動台の下にエアサス（空気ばね）付きの免震底盤を追加することで、実験机等の共振やそれに伴う高周波振動を遮断した（図 5-25）。



(a)



(b)

図 5-25 エアサス付きの免震底盤による振動抑制効果（後期型）
 (a) 上下（UD）成分の加速度波形記録（サンプリング
 間隔：0.01s）
 (b) 上下（UD）成分の加速度波形の FFT スペクトル
 （平滑化数：5）

5.6.9 冷却恒温水槽

上記実験装置 1 式を格納する大型冷却水槽は，既存の実験用タイプでは容量が足りないことと，大型特注品の場合は金額面や納期面では不利であることから，家庭用・業務用の冷凍ストッカー（上開きタイプ）を用いて改造した（図 5-26）．改造では，冷凍機の電源回路または制御部に自作の制御ユニットを取り付け，一定の温度域内に自動的に維持できるようにした．制御ユニットは， -60°C ～ 200°C の測定レンジを持ち，分解能 $=0.1^{\circ}\text{C}$ のデジタル温度センサーを基に ON-OFF スイッチを駆動する電気信号を出力できる．ON-OFF スイッチは，初期型では自作の油圧式を採用したが，後期型では半導体リレー式に置き換えている（表 5-11）．

表 5-11 本研究に用いた冷却システムの仕様

| 項目 | パラメータ |
|-------------|--|
| 改造ベース | 市販の大型冷凍ストッカー 2 台 |
| 温度制御方式 | デジタル on-off 制御コントローラー |
| On-off 作動機構 | 前期型：自作油圧スイッチ 後期型：半導体リレー |
| 冷却液 | 食塩または塩化カルシウム溶液 |
| 冷却液循環方式 | 主水槽：フィルター付き循環ポンプ 副水槽：長型シャフト＋大径プロペラ |
| 設定可能温度 | -50°C ～室温 $^{\circ}\text{C}$ |
| 温度制御精度 | $\pm 0.1^{\circ}\text{C}$ （実測値） |

また，水槽内の不凍液は，水道水をベースに凍結防止剤を添加することで作成した．凍結防止剤については，水冷エンジンの不凍液成分であるエチレングリコールや，道路融雪用に使われる無機塩類などを検討したが，本実験では，樹脂やゴム材料への浸食性，毒性および入手・処分コストの都合上，後者を採用した．図 5-27 には，道路融雪に使われる無機塩類による氷点降下効果を示す．氷点降下幅が -20°C 以内であれば MgCl_2 は一番効果が良いが，本研究では調達面やコスト面から NaCl と CaCl_2 を採用し，実験の温度域に応じて塩分濃度を調整した．

さらに，水槽内各部の冷却液の温度を均一に保つことや，高塩分

の冷却液に浸す実験装置の鉄部から発生した錆色の沈殿物を除去することを目的として、冷却液の濾過循環装置を設けている。同装置は、庫内底部から吸い込んだ冷却液をフィルターを透過させ、遠心式ポンプにより液面が高い副水槽に圧送する。副水槽から戻った冷却液をポンプにより主水槽の内壁に沿って噴射させ、冷却効率の向上と庫内温度の均一化を図る。また、副水槽の流出口の高さを変えることで、主・副両水槽の水位を調整できる。これにより、冷却液の浄化と循環を実現でき、かつ需要に応じて水位の調整も可能になる。なお、副水槽は冷凍ストッカーの内壁（冷却表面）と直接に接触しないため、モーターの発熱による影響を抑えるように、冷却液の攪拌には長型シャフトの先端に取り付けた低回転の大径プロペラを採用した。



(a)



(b)

図 5-26 本研究で使用した恒温冷却水槽
(a) 10 番冷凍ストッカー (b) 12 番冷凍ストッカー

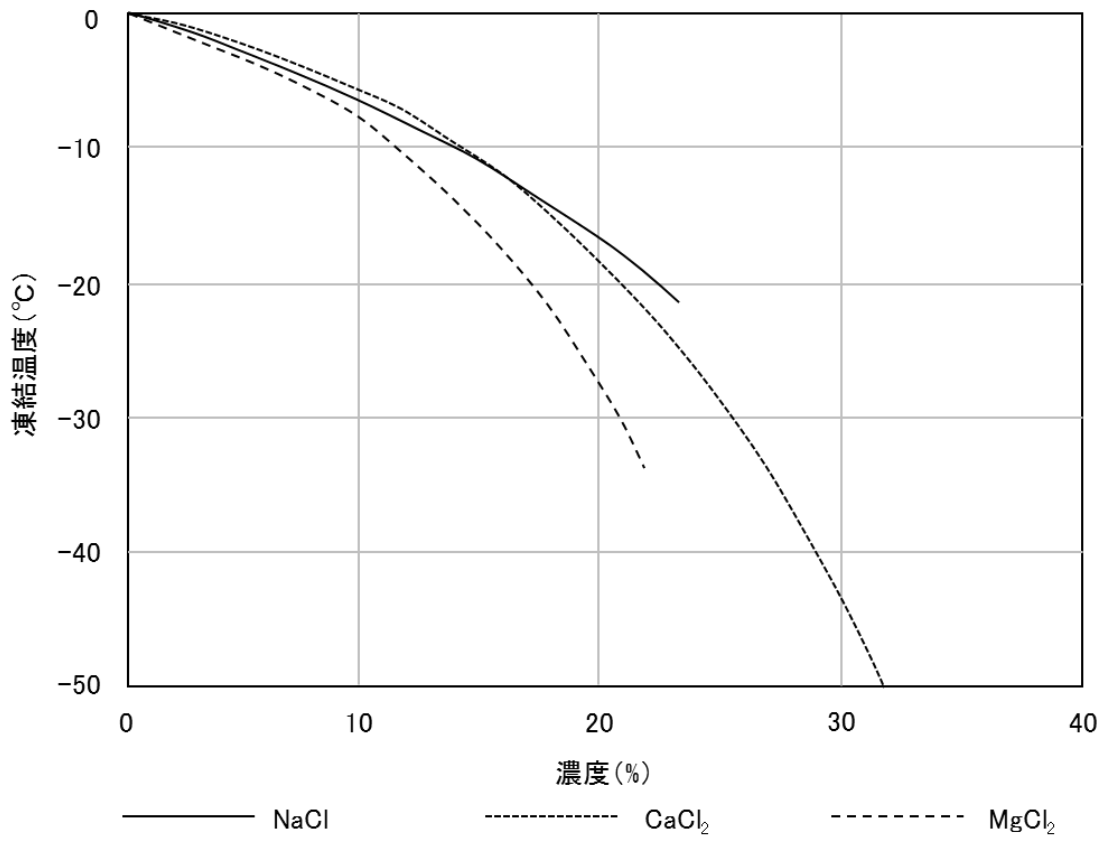


図 5-27 道路融雪用の無機塩類の溶液濃度に対する氷点降下効果
 (日本建設機械化協会, 2004) を基に作成

5.6.10 定量排水装置

本実験では、氷置換法により i-BH 供試体を作製するために、供試体の孔隙水を一部排出し、気相連続・水不飽和の状態にする必要がある。このニーズに応じて、図 5-28, 5-29 に示す定量排水装置を製作した。同装置は、木製の台座に加湿塔と超音波霧化システムを設け、水蒸気飽和空気を一定の流量によってコアセルに圧入することができる。また、この流量を制御することで、孔隙に残存する水の量、すなわち生成可能な i-BH の飽和率を調整することができる。なお、排水に水蒸気飽和空気を使用した理由は、孔隙水の蒸発により供試体の上流側に異常乾燥を引き起こすリスクを避けるためである。図 5-30 に、同装置のデモ運用時におけるコアセルの質量変化を示す。水蒸気飽和空気を圧入した場合は、5, 50, 500mL のいずれの流量においても、圧入開始から約 10min 後にコアセルの質量変化が見られなくなり、同流量における定常状態すなわち排水限界に達したことが確認された。一方、乾燥空気に切り替えた後には、コアセルの質量が緩やかに低下していくこと、また乾燥空気の流量が高いほど質量の低下スピードが速いことが分かった。さらに、これらの供試体を凍結後に観察すると、供試体の上流側は非常に脆く、氷の生成がほとんどなかったことが分かった。これは、真っ先に乾燥空気と接触した上流側の孔隙水が蒸発したため、供試体内の水分布が不均質になったからである。以上のことから、本実験では均質な供試体を作成できるよう、排水には水蒸気で飽和した空気を使用するように定めた。なお、コアセルの製作公差により内寸が微小に異なることを考慮し、排水の具合を示す指標として、供試体の軸方法における空気の圧入速度 (cm/s) を採用した。

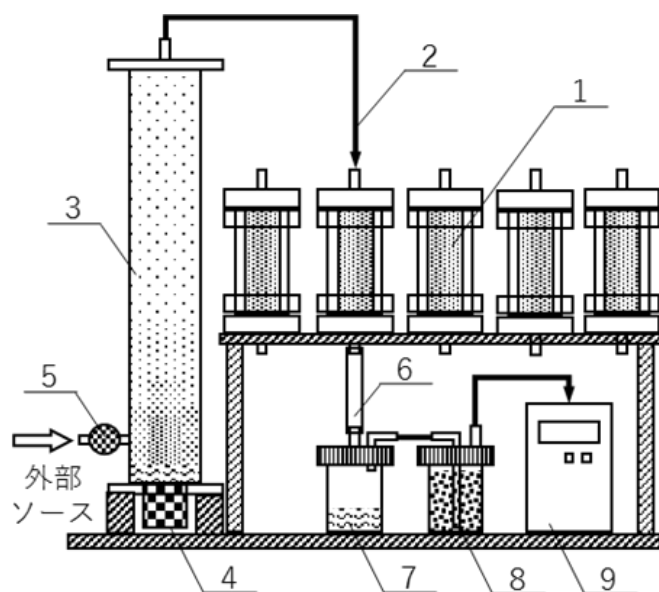


図 5-28 定量排水装置のイメージ図

1-コアセル（供試体），2-チューブ，3-加湿塔，4-超音波霧化ユニット，5-ダイヤル（ニードル弁），6-クリアチューブ，7-水回収瓶，8-乾燥瓶，9-気体流量計



図 5-29 定量排水装置の実機写真

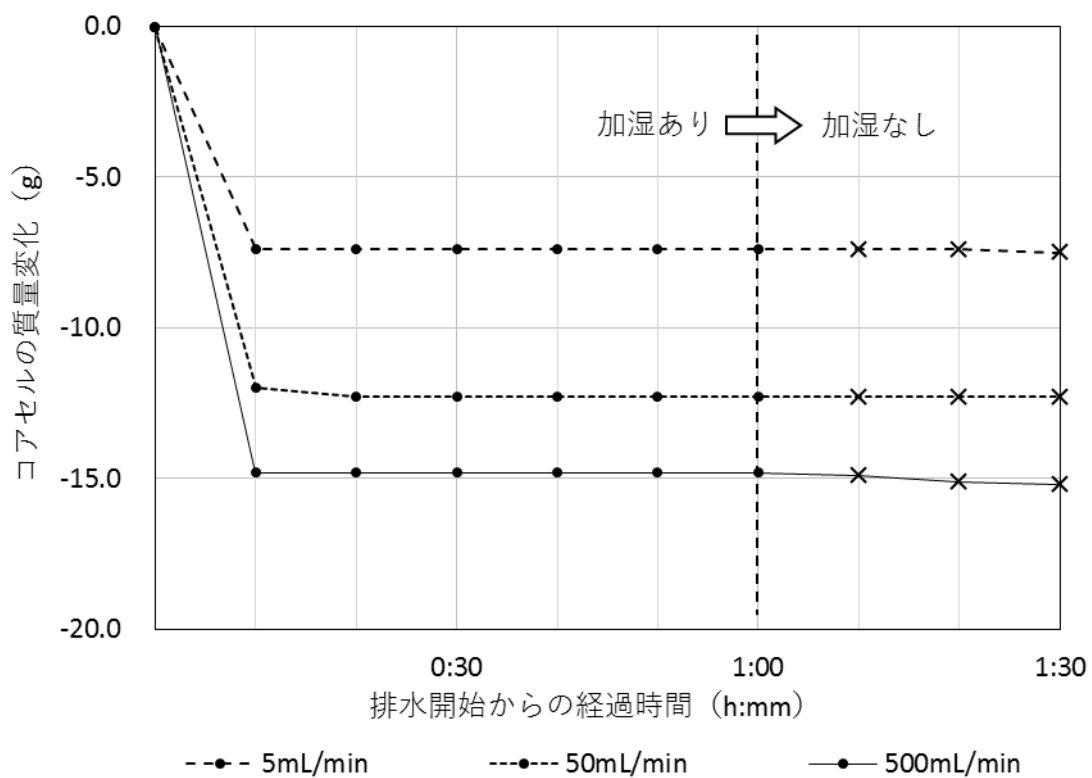


図 5-30 排水時の加湿有無によるコアセルの質量変化

5.6.11 改良剤の配合，注入装置（水層・TBABハイドレート用）

改良剤の作製方法は，模擬ハイドレートの種類により異なる．THを含む供試体では，孔隙が TBAB 溶液により充填され，その濃度は該当温度における平衡状態にある．しかし，通常の地盤改良剤には TBAB を含まないため，改良剤の注入に伴い孔隙中の TBAB 濃度が低下し，TH の意図しない分解を起こしてしまう．これを回避するためには，TH 供試体に注入する改良剤の作製に TBAB 平衡溶液を分散媒として用いた．一方，i-BH 供試体およびハイドレートを含まない供試体の場合は純水を使用した（表 5-12）．

表 5-12 改良剤の配合一覧

| 対象供試体 | 分散媒 | 有効成分 (主剤) | 配合剤 | 促進剤 |
|--------------|--------------|----------------|-----------------|-----------------|
| ハイドレート なし | 純水 | セメント系 地盤改良剤 | ポリカルボン 酸系分散剤 | GA-01 または不使用 |
| TH | TBAB 平衡溶液 | セメント系 地盤改良剤 | ポリカルボン 酸系分散剤 | GA-01 または不使用 |
| i-BH | 純水 | セメント系 地盤改良剤 | ポリカルボン 酸系分散剤 | GA-01 または不使用 |

また，注入薬剤の作製と注入は以下の手順で行った．

- (1) 純水，または実験温度において平衡濃度を有する TBAB 溶液を用意する．
- (2) 前記純水または TBAB の平衡溶液に独自の促進剤を配合する．
- (3) 前記薬液に配合剤を一定量（メーカー推奨の添加量）に投入する．
- (4) 前記薬液にセメント系地盤改良剤を混合し，高速攪拌機により 5min 以上攪拌する．
- (5) 攪拌後の薬剤を冷却銅管またはステンレス瓶により所定の温度まで冷却させ，2次元断面モデルまたは円柱型供試体に注入する．

なお，促進剤を使用しない一部の実験では，手順（2）を省略する．また，手順（5）で改良剤を冷却する理由は，室温で調製した

改良剤自身が持つ熱により模擬ハイドレートを分解させ、その初期飽和率に影響を与えることを防ぐためである。さらに、原則として、全ての供試体において目標注入量を 100mL に統一した。ただし、高濃度促進剤を使用した一部の実験では、供試体の下流側に設置したろ過材の手前における改良剤粒子の濃集による注入レートの異常低下や供試体の不均質を避けるために、目標注入量を 80 mL に制限した。

5.6.12 薬剤注入・生産レート測定装置（イソブタンハイドレート用）

i-BH 供試体にインヒビターまたは改良剤を注入し、分解ガスの挙動を観察・記録するために、図 5-31 に示す装置を製作した。同装置は、A・薬剤貯蔵ユニット→B・注入ユニット→C・流体分離計測ユニットの順で構成され、さらに A の上流側と C の下流側には D・与圧ユニットが設けられている。これにより、供試体の圧力を i-BH の安定領域内に維持しながら差圧を作成でき、インヒビターや改良剤といった薬剤を定められた圧力で供試体に注入可能である。一方、供試体を透過した薬剤や i-BH の分解で発生したガスと水は、下流側にある C・流体分離計測ユニットで分離され、個別に体積を計測できる。その際、8-1-メスシリンダーで回収された分解ガスは、下流圧および両メスシリンダーの液面差により体積が変動するため、式(5-13)により標準状態に換算した。また、8-1-メスシリンダーで回収したガス量が増えるにつれて排出部との液面差が大きくなり、下流圧が上昇するため、差圧の制御ではこの点を考慮し、式(5-14)により補正した。なお、実際の実験では、注入管路の P1 と与圧管路の P2 にコモンレールを設け、コアセルおよび分離計測ユニットを複数並列して運用した。

$$V_g = \frac{V_{8.1}P_{8.1}}{P_0} \quad (5-13)$$

$$P_{\text{下流}} = P_{8-1} = P_{8-2} - P_{\text{液柱}} = P_{10} - \rho_{\text{液}} g\Delta h/1000 \quad (5-14)$$

なお、 V_g ＝室温常圧状態に換算したガスの体積（mL）、 $V_{8.1}$ ＝8-1-メスシリンダーで読み取ったガスの体積（mL）、 P_0 ＝大気圧（101kPa）、 $P_{\text{下流}}$ ＝供試体の下流圧（kPa）、 P_{8-1} ＝8-1-メスシリンダーの圧力（kPa）、 P_{8-2} ＝8-2-メスシリンダーの圧力（kPa）、 $P_{\text{液柱}}$ ＝8-1-メスシリンダーの排液管内の液柱による圧力（kPa）、 P_{10} ＝リリーフ弁により制御したシステムの下流圧（kPa）、 $\rho_{\text{液}}$ ＝8-1-メスシリンダー内の液体の密度（染色水に混入した薬剤の量が極めて少ないため、 $1.0 \times 10^3 \text{kg/m}^3$ とした）。 Δh ＝8-1-メスシリンダーの液面と、8-1→

8-2 への流出口との液面差 (m).

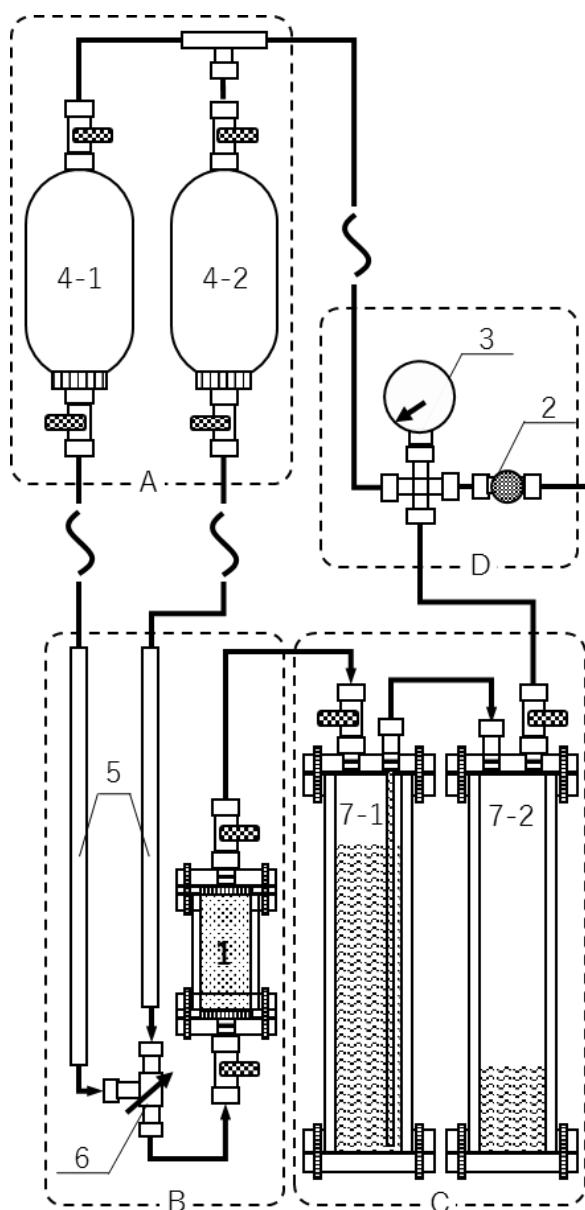


図 5-31 i-BH 供試体への薬剤注入・流体回収装置のイメージ
 1-コアセル, 2-調圧弁, 3-圧力計, 4-1-インヒビタータンク, 4-2-改良剤タンク, 5-冷却銅管, 6-三方弁, 7-1-耐圧メスシリンダー (ガス計測用), 7-2-耐圧メスシリンダー (液体計測用)
 A-薬剤貯蔵ユニット, B-注入ユニット, C-流体分離計測ユニット, D-調圧ユニット

5.6.13 浸透率測定装置

浸透率の測定はダルシーの法則に沿って行った。ダルシー法則は、多孔質媒体に流体が透過する際に、多孔質媒体および流体の性質に対する流体の透過しやすさを表すものであり、図 5-32 及び式 5-15 により表現できる。

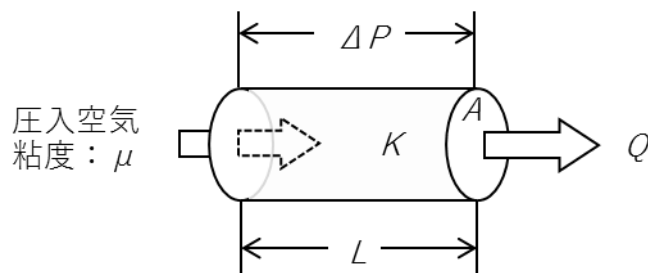


図 5-32 ダルシー法則を表現するイメージ図

$$Q = K \frac{A \Delta P}{L \mu} \quad (\text{式 5-15})$$

なお、 Q = 流量 (mm/s)、 K = 係数すなわち絶対浸透率 (D)、 A = 断面積 (cm²)、 L = 長さ (cm)、 ΔP = 差圧 (Pa)、 μ = 測定流体の粘度 (cP)。

最も簡単な円柱型供試体の浸透率を測定するためには、寸法既知の供試体内部に測定流体を透過させ、その差圧、流量、粘度を計測すれば、式 5-15 により絶対浸透率を求めることができる。しかし、本実験では、供試体によって模擬ハイドレートが含まれており、その分解を起こさずに正確に計測する必要がある。そのため、供試体内のハイドレートの有無、およびハイドレートの種類によっては、以下の 3 パターンに分けて浸透率を測定した。

5.6.13.1 ハイドレートを含まない供試体

模擬ハイドレートを含まない供試体については、従来の方法と同様に、空気を測定流体とし、既設の浸透率測定装置を使用した (図 5-33)。ただ、供試体の孔隙には、改良剤の反応残液などの水分が

含まれるため、その水分を排出後に測定を行った。排水操作では、コアホルダーに装填し拘束圧を掛けた供試体の上流側に大量の空気を圧入し、孔隙水を可能な限り排出または乾燥させる。また、拘束圧や上流圧は供試体の強度を上回ることができないため、成形時の触感を基に判断・設定する。なお、測定装置の仕様上、最大拘束圧及び上流圧は 500kPa までとなるため、一部の極軟弱な供試体を除き、原則この最大圧力で排水を行った。

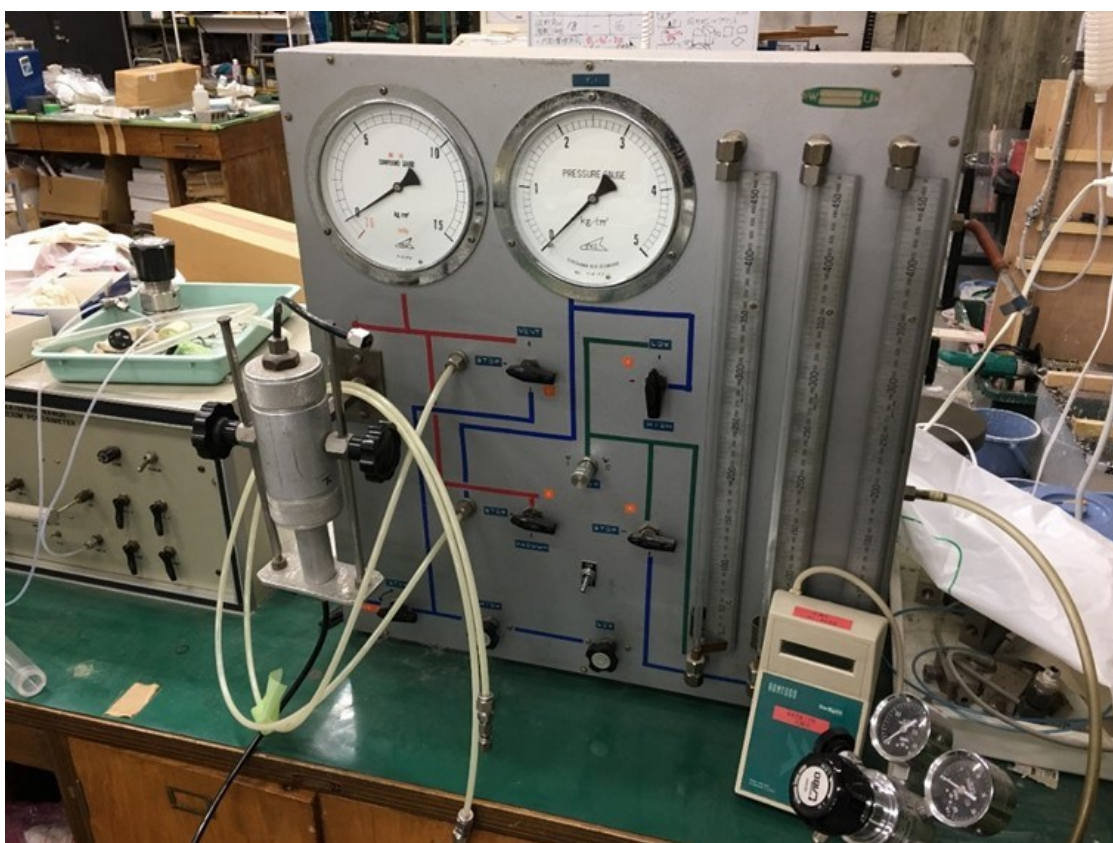


図 5-33 実験室に既設した浸透率測定装置

5.6.13.2 TBAB ハイドレートを含む供試体

TH を含む供試体の浸透率を測定には、TH の分解を起こさずに行う必要がある。そのため、本実験では、TH 供試体をコアセルから押し出さずに、3℃の冷水中で測定する方式を採用した。その測定の手順を以下に示す。

- 1) 改良剤により固結した供試体の両端には、砂を保持するための濾過材やセメントの層が付着することが多いため、そ

の影響を避けるように、供試体の両端を数 mm 削り成形を行う。

- 2) コアセルの上下フランジに専用の測定キットを装着し、長さ 20m の冷却銅管（図 5-34）を通じて図 5-33 の装置または外付けのコンプレッサーに接続する。
- 3) 上記セットを 3℃ の冷却水に浸し、前記図 5-33 の装置または外付けのコンプレッサーからの圧縮空気をコアセルに導入する。
- 4) 圧縮空気により、孔隙内にある TBAB 溶液または改良剤の反応残液を排出してから測定を行う（図 5-35）。なお測定部は、図 5-33 の装置をそのまま流用できるが、浸透率が極めて低い供試体の場合は外付けのコンプレッサーからの圧縮空気を直接に圧入することも可能である。



図 5-34 測定流体（空気）を冷却するための銅管（製作時）



図 5-35 TH を含む供試体向けの浸透率測定装置

なお、排液用の圧縮空気を十分に冷却するためには、空気の流量に上限がある。また、供試体内における空気の流動抵抗により熱が発生し、供試体の温度の上昇すなわち TH の平衡に影響を及ぼす可能性も想定される。そのため、TH 供試体の排液作業では大流量の空気を用いることができず、TBAB 溶液または改良剤の反応残液を完全に排出することは困難である。ただし、孔隙液体の飽和率をある程度まで下げれば、その状態における空気の相対浸透率を供試体の絶対浸透率と近似的に見なすことができる。この状態を達成させるための空気流量を探るために、TH 供試体に圧入した空気の流量に対する見掛け浸透率の測定値の関係を求める実験を行った。その結果を図 5-36 に示す。圧入流量 $\leq 400 \text{ mL/min}$ では、空気流量の増加に対し見かけ浸透率も著しく向上することから、この流量では TBAB 溶液をまだ十分に排出できていないことが示唆される。一方、圧入流量 $\geq 500 \text{ mL/min}$ の場合は、圧入流量や経過時間に対して見

掛け浸透率は殆ど変わらないことから、孔隙にあった溶液が十分に排出され、かつ TH の分解も起こしていないことが確認された。以上の結果から、本実験装置による排水工程では、空気の圧入流量を 500～700mL /min とし、その時の見掛け浸透率を TH 分解前の有効浸透率と見なした。

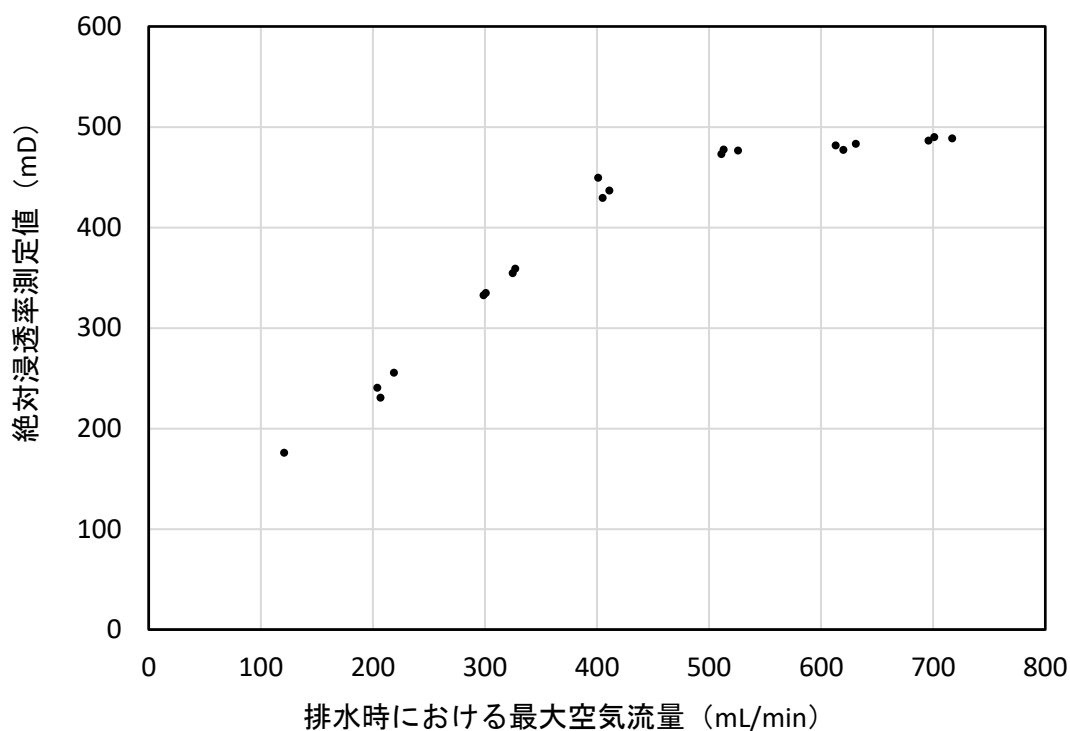


図 5-36 空気圧入流量に対する見掛け浸透率

一方、温水により TH を分解させた後の浸透率を計測する場合は、供試体内に固相の TH が存在しないため、前述 5.6.13.1 の手法により常温で計測した。

5.6.13.3 イソブタンハイドレートを含む供試体

i-BH 供試体の浸透率を計測する場合、i-BH の分解を抑えるように、供試体および測定流体の温度、圧力を i-BH の安定領域に維持しながら測定する必要がある。そのため、測定流体に空気を用いることができず、以下の 3 流体を使用することを検討した。

- (1) 純水
- (2) イソブタンガス
- (3) i-BH の安定領域内に分圧を維持したイソブタンと不活性ガスからなる混合ガス

(1) 純水を用いる場合は、孔隙にイソブタンガスが充填された供試体を水飽和状態に戻す必要があるが、その工程では真空吸引とCO₂ガスの通気が必要なため、i-BHの維持が困難である。一方、(2)、(3)の場合は、測定流体であるイソブタンガスが残留水(氷)と反応し、新たにi-BHを生成する可能性があるため、測定対象となる供試体が平衡状態に達したことが条件である。また、(2)イソブタンガスを用いる場合は、上流圧を実験温度におけるイソブタンの蒸気圧を上回ることができないため、それよりも高い上流圧が必要とする場合は(3)混合ガスを使用することになる。ただし、(3)混合ガスを使用する場合は、文献値に記載がない混合ガスの粘度を別途測定する必要があることや、混合ガスの調製・貯蔵条件により性状が変わる可能性があることから、高い上流圧を必要とする低浸透率の供試体に限り実施する。

また、供試体の両端に差圧を作る方法として、上流側昇圧法と下流側減圧法がある。前者は、供試体の下流圧を大気に開放した状態から、上流圧を徐々に昇圧させ、それに伴う流量の変化から浸透率を求める方法である。これは、水層(ハイドレートなし)またはTH供試体を大気圧付近で測定する際によく用いられるが、i-BHの場合は実験温度によって大気圧では分解するため、下流圧の管理も必要である。一方、後者の場合は、供試体をイソブタンの蒸気圧に置いた状態から、下流圧を徐々に低下させて測定する方式である。下流圧のみを制御パラメータとしているため、圧力の調整が比較的簡単である。このため、本実験では、特段の説明がない限り、i-BH供試体の浸透率の計測には下流圧減圧方式を採用した。ただ、いずれの方式においても、測定流体に(2)イソブタンガスを用いる限り、供試体の両端に作成できる最大差圧は同温度における(イソブタンの蒸気圧 - i-BHの安定領域の下限圧)の差分までである。

以上のことから、i-BH を含む供試体を対象とした浸透率測定装置を図 5-37 のように設計した。その実機写真を図 5-38 に示す。ガスタンク 5 からのイソブタンガスは、上流側緩衝瓶 2 と三方弁 6 を経由し、コアセル 1 に圧入する。一方、コアセル 1 を透過したイソブタンガスは、下流側緩衝瓶 3、レギュレータ 7 を経て気体流量計 7 に送り込む。また、その流量をレギュレータ 7 により調整することで、供試体の下流圧を制御可能である。供試体の上流圧と下流圧を、それぞれ上流側緩衝瓶 2 と下流側緩衝瓶 5 に設置した圧力センサー 9 により検出し、その差分を供試体の差圧とする。なお、供試体の両側に緩衝瓶を設ける理由は、1) ニードル弁の誤操作によるガス圧の急激な変化を吸収すること、2) ガスの流速を緩め、圧力の計測精度を向上させること、および 3) 供試体から水や反応残液が排出した場合に気液分離を行うためである。さらに、三方弁 6 から下流側の緩衝瓶までのバイパス管路を設けたが、これは、コアセルを取り付けた後・下流側のバルブを開ける際に、供試体内の i-BH の意図せぬ分解を起こさないように、下流側のガス圧力を予め i-BH の安定領域に昇圧させるためである。なお、実際の運用では、液化イソブタンの気化によりガスカートリッジの温度が低下し、供給できる上流圧も低下するため、連続した測定ではガスカートリッジを複数並列に設ける必要がある。また、供試体温度がガスカートリッジの温度より低い場合はイソブタンガスが供試体内で液化するため、冷却液の循環と温度管理が大切である。

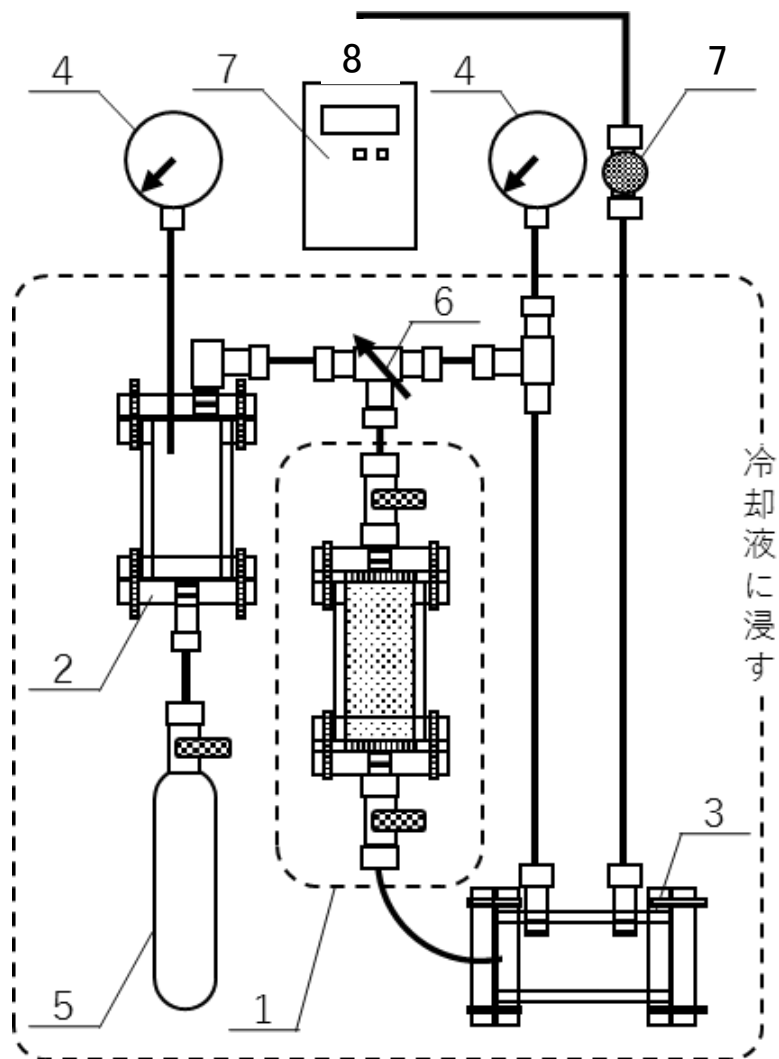


図 5-37 i-BH を含む供試体向けの浸透率測定装置のイメージ
 1-コアセル，2-上流側緩衝瓶，3-下流側緩衝瓶，4-圧力計，5-交換式ガスカートリッジ，6-三方弁，7-レギュレータ，8 気体流量計

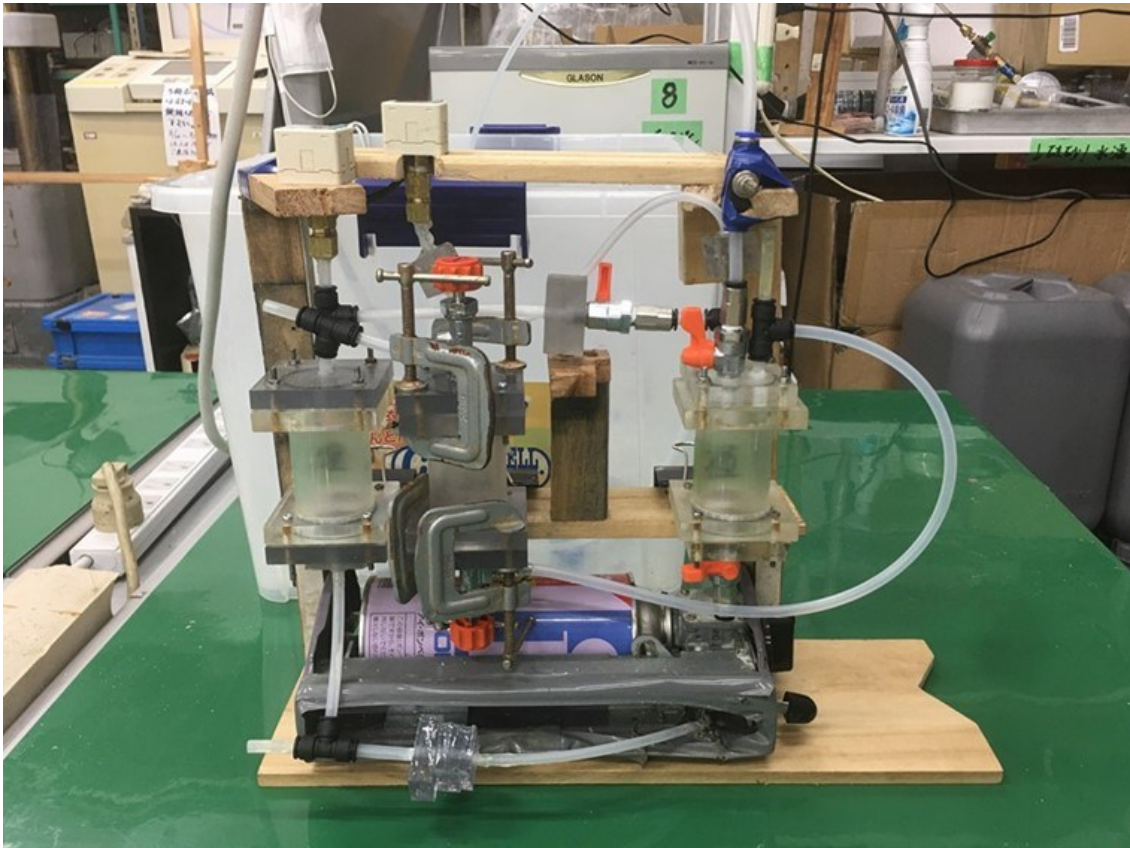


図 5-38 i-BH を含む供試体向けの浸透率測定装置の実機
(初期型)

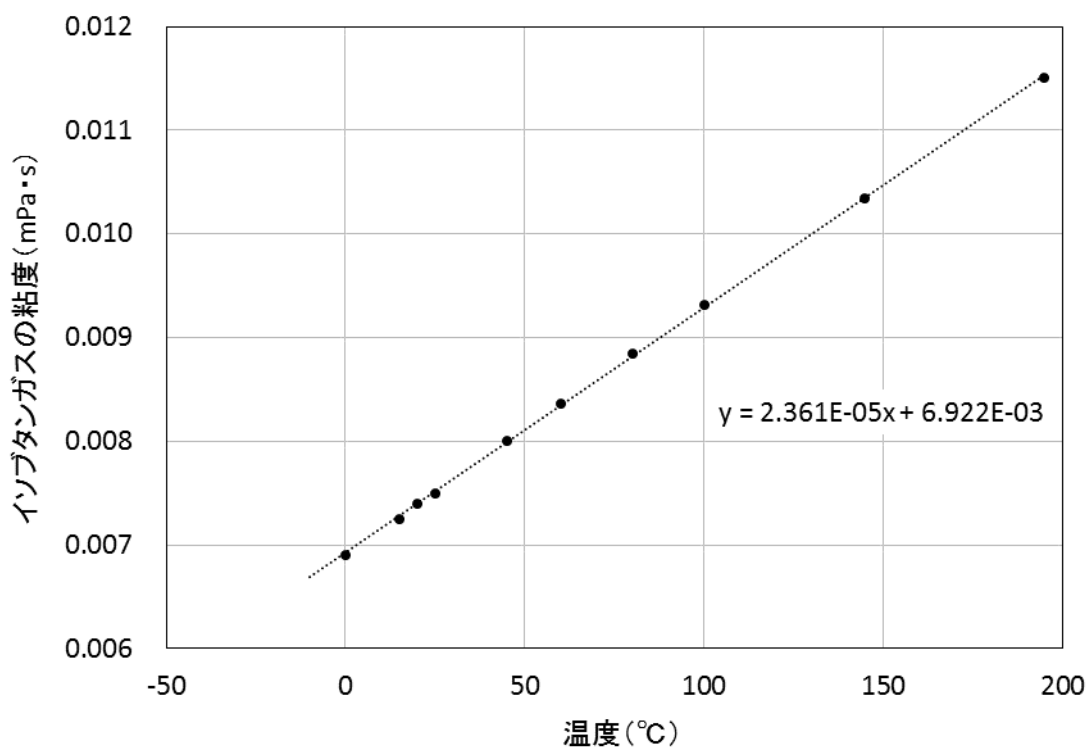


図 5-39 温度に対するイソブタンガスの粘性分布と実験式
 (Gas Encyclopedia HP) および (Y. Abe ほか, 1979)
 を基に作成

なお、計測センサー類の選定では、市販の流量センサーにはイソブタンガスに対応する機種がなく、一般気体（乾燥空気、窒素、炭酸ガス、アルゴン等）用のものを流用せざるを得なかった。しかし、流量センサーの仕組み上、ガス種ごとに演算係数が異なり、正確な流量値を出力するためにはイソブタンガスに対応した算定係数または補正係数を求める必要がある。本実験では、1台の流量計を空気／イソブタン両方に兼用させることと、データ演算の正確性を確保する（不意に演算部に変更を与えてしまわないようにする）観点から、珪石粉から作製したデモンストレーションコアを用いて、見掛け流量値から正確な流量に変換するための補正係数を求めることにした（後述）。その際に用いたイソブタンガスの粘度値を図 5-39 に示す。

5.6.14 一軸圧縮強度測定

本手法による改良体が MH 層の安定化に寄与する効果を定量的に評価するには、模擬ハイドレート分解後の絶対浸透率の測定を済ませた供試体を対象に一軸圧縮試験（UCS）を実施した。一軸圧縮強度の測定では、材料実験室および学科実験室に既設の万能試験機（島津製作所製）を使用し、「地盤材料試験の方法と解説」（社団法人地盤工学会，2010）に示す手順で行った。また、一部欠損のある供試体を対象に、円柱形になるよう再度成形を行った。これらの供試体は長径比が大きく異なるため、その測定値を図 5-40 から求めた実験式 5-16 を用いて補正を行った。

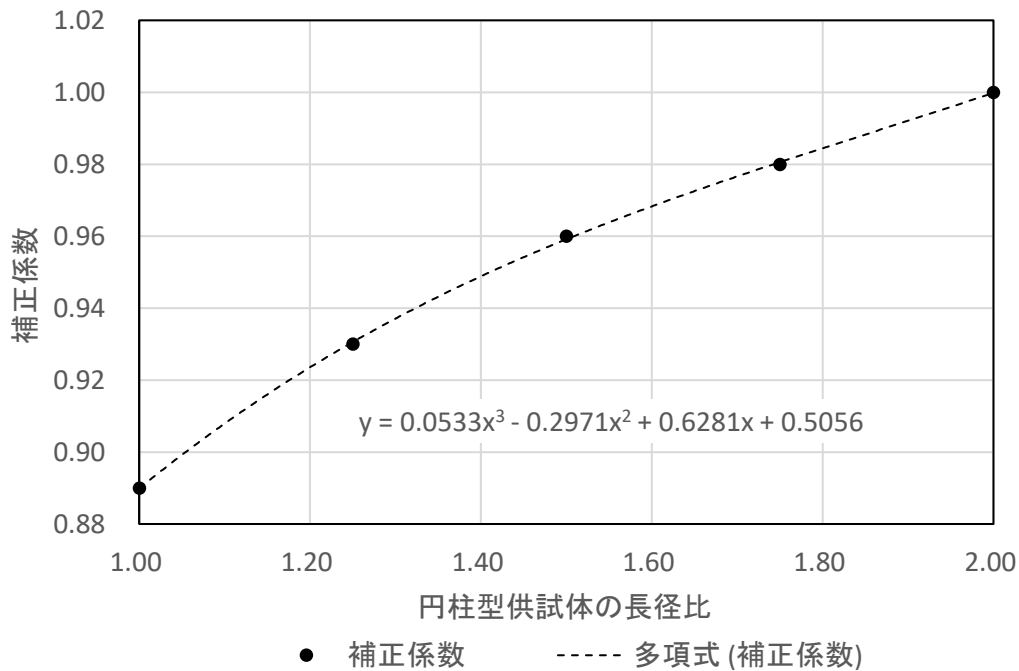


図 5-40 円柱型供試体の長径比に対する一軸圧縮強度の補正係数（JIS A 1107-1993）のデータに基づき作成

$$k = 0.0533r^3 - 0.2971r^2 + 0.6281r + 0.5056 \quad \text{式 5-16}$$

なお、 k = 補正係数， r = 供試体の長径比

以上の検討に基づき，本研究における実験の共通条件を表 5-13 に，実験の流れを図 5-41，5-42 にまとめた．

表 5-13 本研究における実験の共通条件一覧

| 項目 | 条件 |
|------------|--|
| 供試体寸法 | 直径 28.10～30.20mm (ロットによる)， 長さ 70mm |
| ハイドレート生成物質 | テトラブチルアンモニウムブロミド (TBAB) イソブタンガス (95%) |
| 地層の材料 | 東北硅砂 7号，東北硅砂 8号， およびその混合物 |
| 作製方法 | 水層 (無ハイドレート) 供試体 -----水中落下法 i-BH 供試体 -----水中落下法 TH 供試 -----溶液中落下法 デモンストレーションコア・直接充填・突き固め法 |
| 孔隙率 | 38% (デモンストレーションコア以外) |
| 地層流体塩分 | 0～40, 000ppm (海塩) |
| 地盤改良剤 | 主 剤：某セメント系改良剤 配合剤：(メーカー推奨) 促進剤：GA-01 |
| 実験温度 | TH の生成および維持温度 : 3℃ 南海トラフの MH 層温度 : 13℃ 実験室の室温 : 23℃ i-BH の生成温度 : -5℃ i-BH 供試体の注入・養生温度 : 0℃ 急速冷凍* : -20℃ |
| 注入圧力 | 1～3号機 : 15kPa 4号機 : 20kPa |

※冷凍ストッカーの最大冷却能力

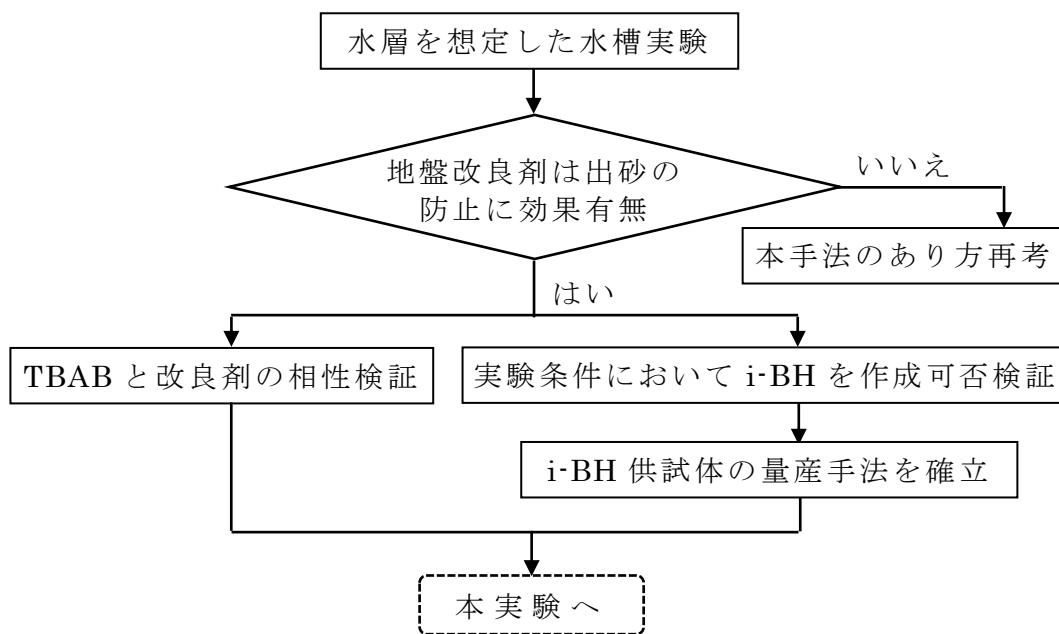


図 5-41 本研究における実験の流れ（予備実験部分）

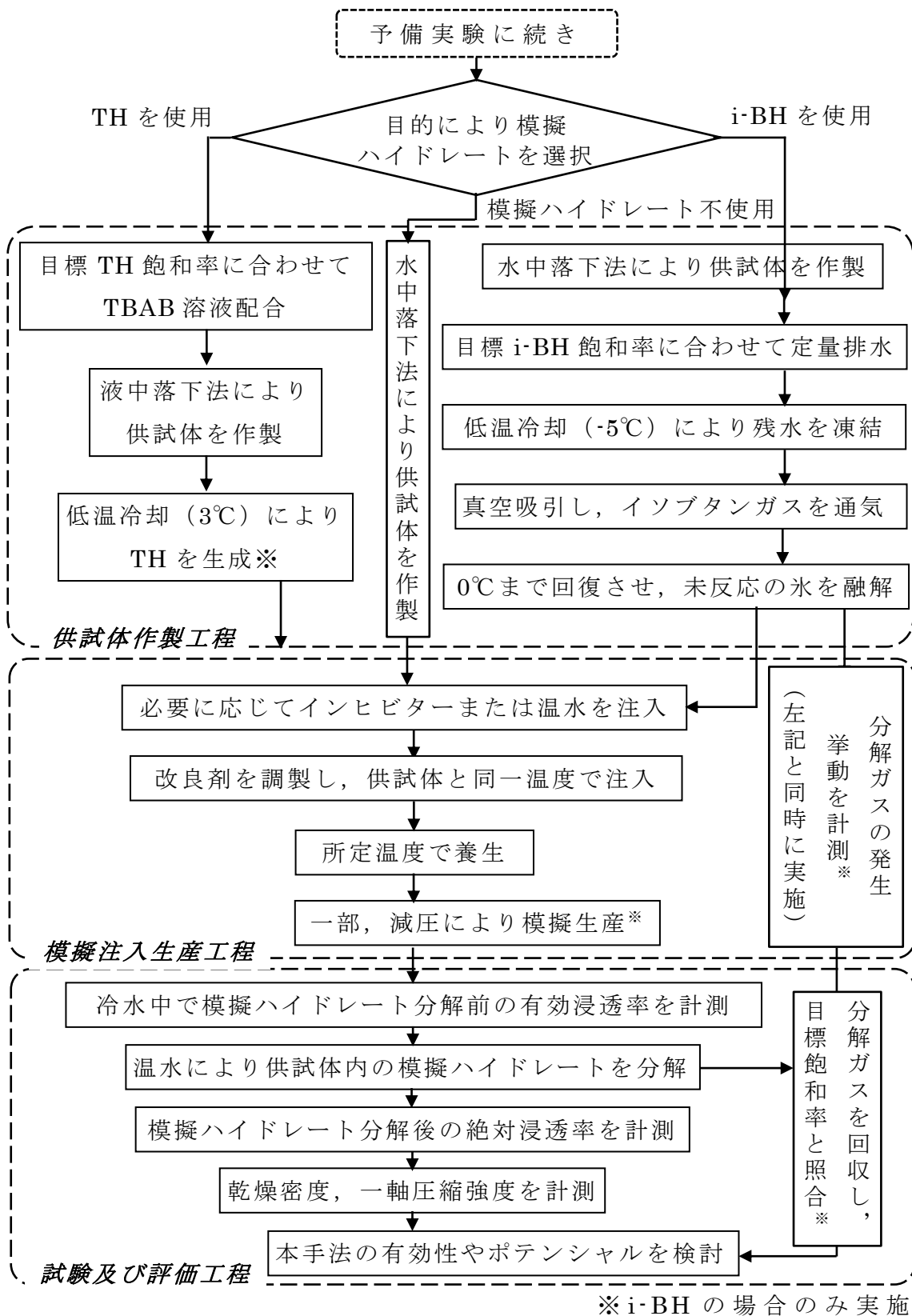


図 5-42 本研究における実験の流れ (本実験部分)

第 6 章 予備実験

本章では，本研究の目的を達成するために行った予備実験 6 点について説明する．

- 予備実験 1：水層を想定した水槽実験
- 予備実験 2：TBAB による地盤改良剤の効果への影響の検討
- 予備実験 3：TH 充填供試体の初期浸透率特性
- 予備実験 4：燃料ガスによる i-BH の生成特性
- 予備実験 5：砂供試体における i-BH の生成実験
- 予備実験 6：i-BH 飽和率の制御手法の確立
- 予備実験 7：供試体温度の安定時間の計測
- 予備実験 8：ガス種による浸透率計測値の補正係数の検討

6.1 水層を想定した水槽実験

地盤改良材は本来、土木工事における軟弱地盤の強化やトンネルの地山の止水などに使われる建設資材であり、貯留層の浸透率を確保しながら出砂を防ぐ用途での運用実績が確認されていない。そのため、予備実験では、まず MH を含まない水層、あるいは MH が完全に分解した砂層を想定し、地盤改良剤の注入有無による流体生産性と出砂の具合を検証する水槽実験を行った。

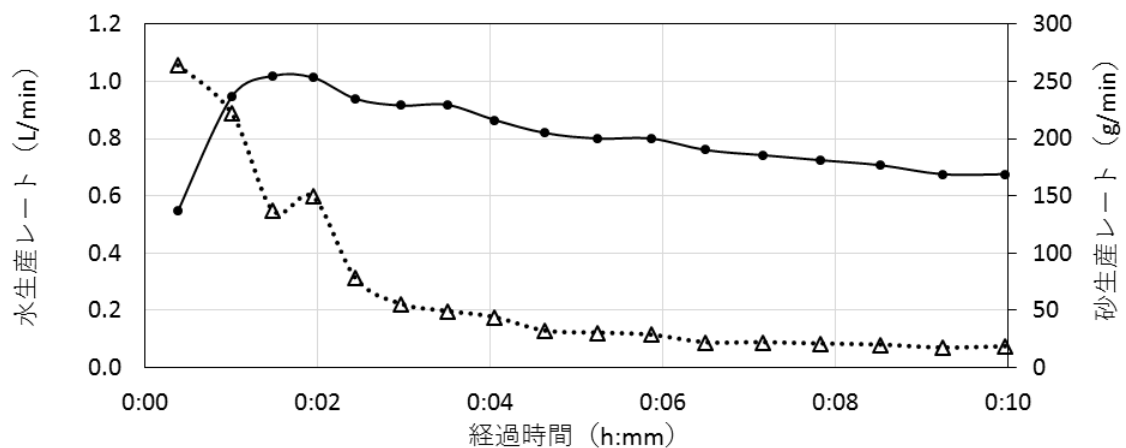
水槽実験では、坑井から広がる 2 次元断面モデルを想定し、1 号機および 2 号機を用いて実施した。実験では、水槽の中に水中落下法により砂を装填し、その孔隙率を 38% になるように振動を与えて砂層の高さを調整した。また、砂層の上にパテとグリースによりシール性の粘土層を作成し、粘土層と砂層の間に隙間がないようにしっかりと締め固めた。シール性を確認した後、模擬坑井側から地盤改良剤を注入し、砂層モデルの色変化から注入フロントの進行を観察・確認した。さらに、注入フロントが砂層モデルの約半分まで到達した時に注入を停止させ、模擬坑井内にチュービングを挿入し、清水循環により坑内洗浄を行った。模擬砂層モデルを室温（23℃）で 1 週間養生し、模擬生産試験を行った。

模擬生産試験では、水槽の左側（坑井の遠方側）より水を補充しながら、右側の模擬坑井の下部にあるバルブから水を生産し、その水と砂の生産レートを測定した。一方、改良剤不使用の参照実験でも同様な条件で水を生産し、砂の挙動と生産レートを記録した。両実験の条件を表 6-1 に示す。

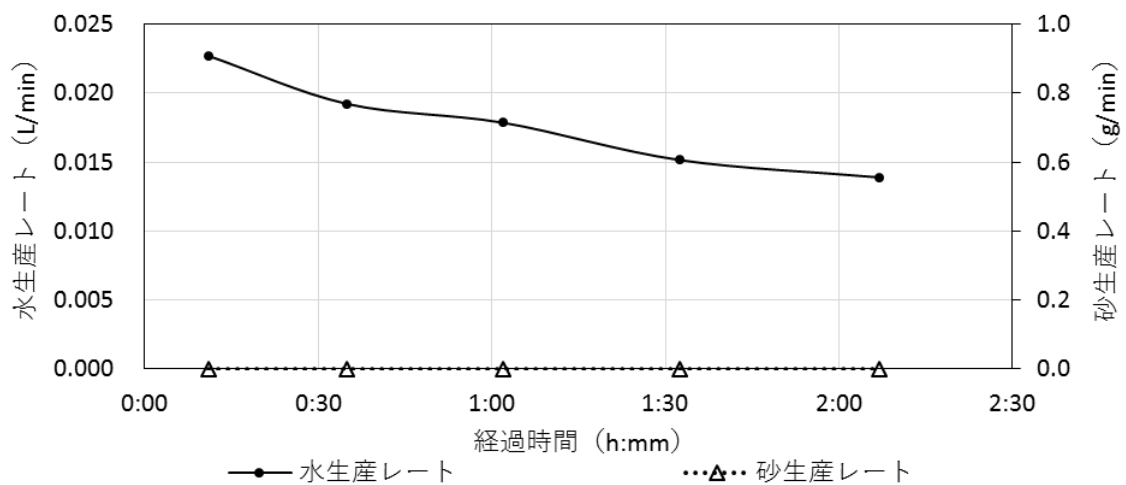
表 6-1 水層注入実験のパラメータ

| 項目 | パラメータ |
|-----------|--|
| 使用装置 | 1, 2号機 |
| 模擬砂層モデル寸法 | 幅 = 450 mm 高さ = 250 mm 奥行き = 10 mm |
| 模擬地層材料 | 東北 7 号 珪砂 |
| 作成方法 | 水中落下法 |
| 孔隙率 | 38% |
| 孔隙水塩分濃度 | 40, 000 ppm |
| 改良剤主剤濃度 | 20 w% |
| 配合剤濃度 | 0.3 w% |
| 促進剤濃度 | 0 g/L (不使用) |
| 薬剤注入圧力 | 15 kPa |
| 養生温度 | 23°C |
| 養生期間 | 1 週間 |
| 水生産の差圧 | 15 kPa |

図 6-1 には、未改良と改良後の模擬砂層における水と砂生産のレートを示す。未改良の砂層では、生産開始直後から坑井付近から砂層の上部にかけ水の通路が現れ、大量の砂粒子が水と濁流になり坑井から流出した。この時点では、水生産レート = 1.0L/min, 砂生産レート = 270g/min と最大値であった。次第に、水の通路の拡大や侵食された砂の量の減少に伴い、水の水生産レートが 0.7L/min 前後に安定し、砂の生産レートが 20g/min 程度まで低下した。この生産レートの低下は、濁流の密度変化が流動ポテンシャルに影響を及ぼしたためと考えられる。一方、改良後の砂層では、水の水生産レートが 0.02L/min と未改良の場合と比べ極めて低い値を示したが、流体の水生産にはある程度の浸透性を維持したことが分かった。また、改良後の砂層から出砂は全く検出されず、砂の生産レートが 0g/min であった。



(a)



(b)

図 6-1 改良有無による水，砂の生産レート
(a) 改良剤不使用 (b) 改良後

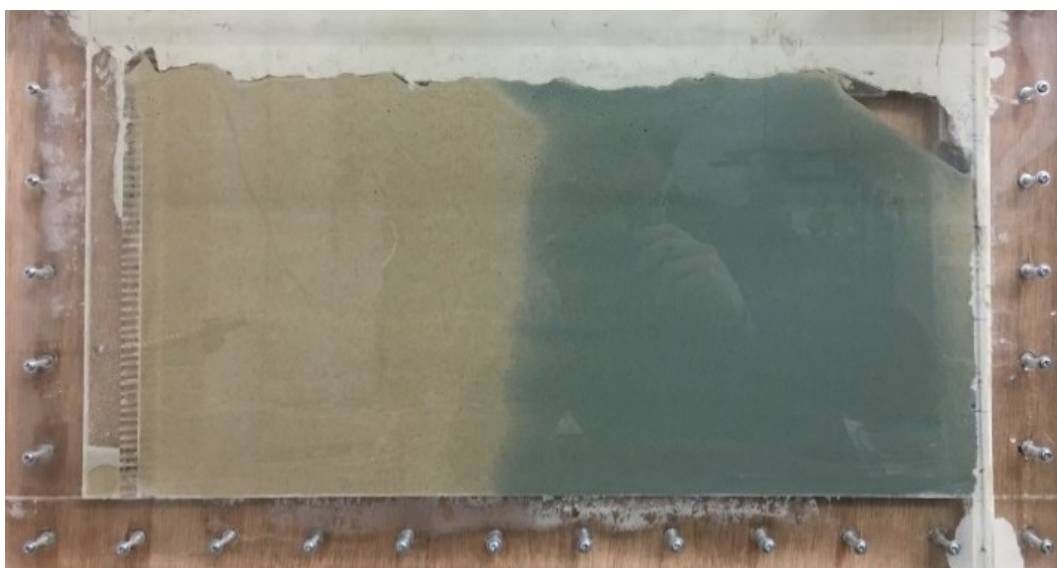
また，図 6-2 には，生産終了後の模擬砂層の様子を示す．未改良の場合は，坑井の近傍から大量の砂が流出し，砂層の上部に広範囲にわたり空洞が発生した．この現象が実際の MH 層で発生した場合，坑井出砂はもちろん，帽岩層の破壊や帯水層までの導通などのトラブルを起こす可能性が考えられる．一方，改良後の砂層の場合は坑井の健全性がよく保っており，改良体の奥側にある未改良部においても砂の不安定な挙動が見られなかった．

以上のことから，地盤改良剤を注入した模擬砂層は浸透性が大幅

に低下したが、砂の流出を完全に防ぐことができた。また、過去の海洋産出試験において帯水層からの水流入に起因したと思われる出水現象が確認されたが、そこに地盤改良剤を注入することで、望まぬ水の生産を意図的に抑えることも可能である。



(a)



(b)

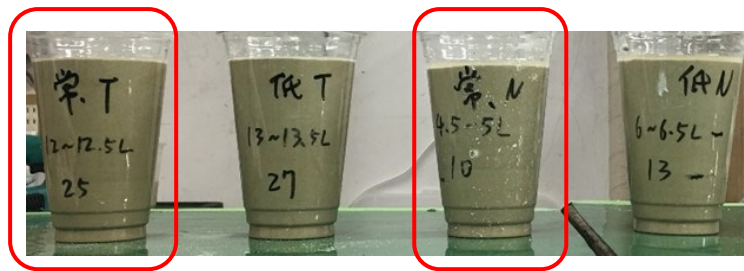
図 6-2 水を生産後の砂層の形態
(a) 未改良の砂層 (b) 改良後の砂層

6.2 TBAB による地盤改良剤の効果への影響の検討

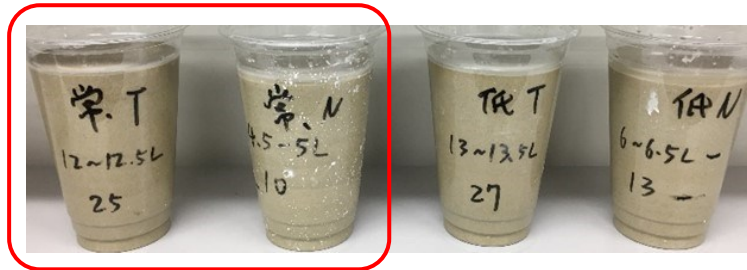
本研究では、模擬ハイドレート 2 種類を使用するが、その生成物質が地盤改良剤に影響を与える可能性を考慮する必要がある。分解ガスの影響を検証するためのイソブタンは、メタンと同じく飽和炭化水素の一種で、セメント系地盤改良剤やその添加剤との化学反応性が認められていない。一方、高飽和率ハイドレートの影響を検証するための TBAB は、相間移動触媒としての利用例が多く、また耐薬品性試験において樹脂類材料への強い浸食性が見られたことから、改良剤の効果に影響を与える可能性が考えられる。このような懸念を払拭するために、TBAB の添加有無による固結後の供試体の物性差異を確かめる実験を行った。実験では、TBAB の添加有無を除き同一配合の改良剤を調製し、その中に砂を落下させ、同一の孔隙率 (38%) まで調整した。その後、試料コップを 2 組に分けて、それぞれ TBAB の生成・維持温度 (3℃) と室温 (23℃) で 7 日間養生し、 $\phi = 30\text{mm}$ のコアドリルにより円柱形の供試体を抜き取り、排水後の浸透率と一軸圧縮強度を計測した。(表 6-2)。

表 6-2 TBAB による改良剤の効果への影響を検証するための実験パラメータ

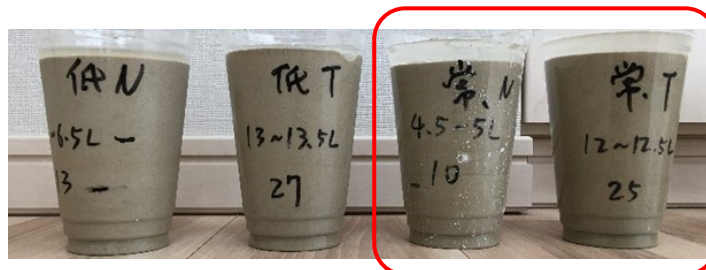
| 項目 | パラメータ |
|----------|---|
| 模擬地層材料 | 東北 7 号硅砂 |
| 供試体の作成方法 | 改良剤中に砂落下法, $\phi 30\text{mm}$ コアドリルによる削孔 |
| 孔隙率 | 38% |
| TBAB 添加量 | 参照組：なし, 試験組：20w% |
| 改良剤 | セメント系地盤改良剤 |
| 改良剤主剤濃度 | 20 w% |
| 配合剤濃度 | 0.3 w% |
| 促進剤濃度 | 0 g/L (不使用) |
| 養生温度 | 3℃, 23℃ |
| 養生期間 | 7 日間 |



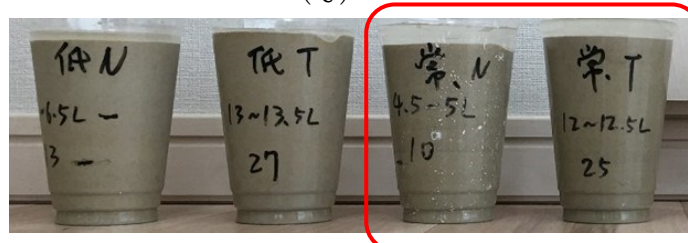
(a)



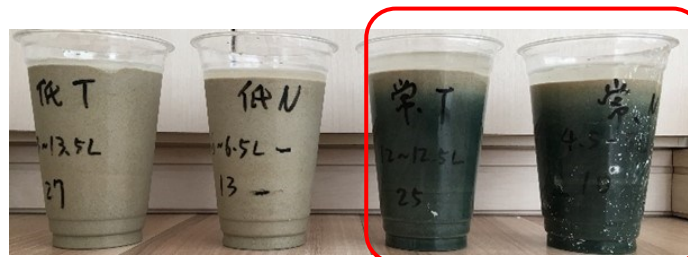
(b)



(c)



(d)



(e)

図 6-3 TBAB を添加した地盤改良剤の固化具合
 (a) 作成直後, (b) 1 日後, (c) 2 日後, (d) 4 日後,
 (e) 7 日後. 赤枠内は常温試験組

実験の結果，室温（23℃）で養生した場合は TBAB の添加有無を問わず砂試料が良好に固結し，供試体の物性値に明確な差異が見られなかった．一方，低温（3℃）養生の場合は，TBAB の添加有無を問わず砂試料が十分に固結できず，コアドリルにより破損なく供試体を抜き取ることができなかった．以上のことから，TBAB の添加有無は供試体の物性すなわち改良剤の効果に著しい影響が確認できず，それよりも養生温度の方がはるかに著しい影響を与えることが明らかになった．

6.3 TH 充填供試体の初期浸透率特性

本研究では，MH の代替として模擬ハイドレート TH や i-BH を用いているが，ハイドレートはケージの種類により成長形態が異なることから，同一の飽和率においても同じ浸透率になるとは限らない．特に，孔隙の中で 100% に近い高飽和率で作製できるとされる TH（高山，2017）は，高飽和率ハイドレート層への注入性の評価に用いられるため，その（薬剤注入前の）初期浸透率特性を MH の場合との比較が重要である．そのため，予備実験では，飽和率 = 27% ~ 91% の TH 供試体を作製し，その排水後の有効浸透率を測定することで，MH の場合の浸透率曲線と比較した．その実験条件を表 6-3 に示す．

表 6-3 氷粒子による i-BH 生成実験のパラメータ

| 項目 | パラメータ |
|-----------|-----------------------------------|
| 使用装置 | 3号機，TH 向けの浸透率測定装置 |
| 供試体材料 | 東北硅砂 7号 (d50=128 μm) TBAB 平衡溶液 |
| 孔隙率 | 38% |
| 目標 TH 飽和率 | 27% ~ 91% |
| 作製方法 | TH 溶液冷却法 |
| 実験温度 | 3℃ |
| 冷却時間 | 24 時間以上 |

図 6-4 に，TH の飽和率に対する排水後の有効浸透率の分布を示す．TH 飽和率の増加につれ，供試体の初期有効浸透率が大きく低下したことが明らかになった．また，その値は，増田の式（式 6-1，Masuda ほか，1997）による予測値と概ね一致していることが確認された．すなわち，TH は MH と類似した飽和率 - 浸透率特性を有し，MH の代替として模擬砂層試料の作成に用いることに相応しいことが明らかになった．

$$K = K_0(1 - S_H)^N \quad (6-1)$$

なお、 K =ハイドレート充填コアの有効浸透率 (mD)、 K_0 =同コアの (ハイドレート無充填状態の) 絶対浸透率 (mD)、 S_H =孔隙中に充填するハイドレートの飽和率、 N =係数.

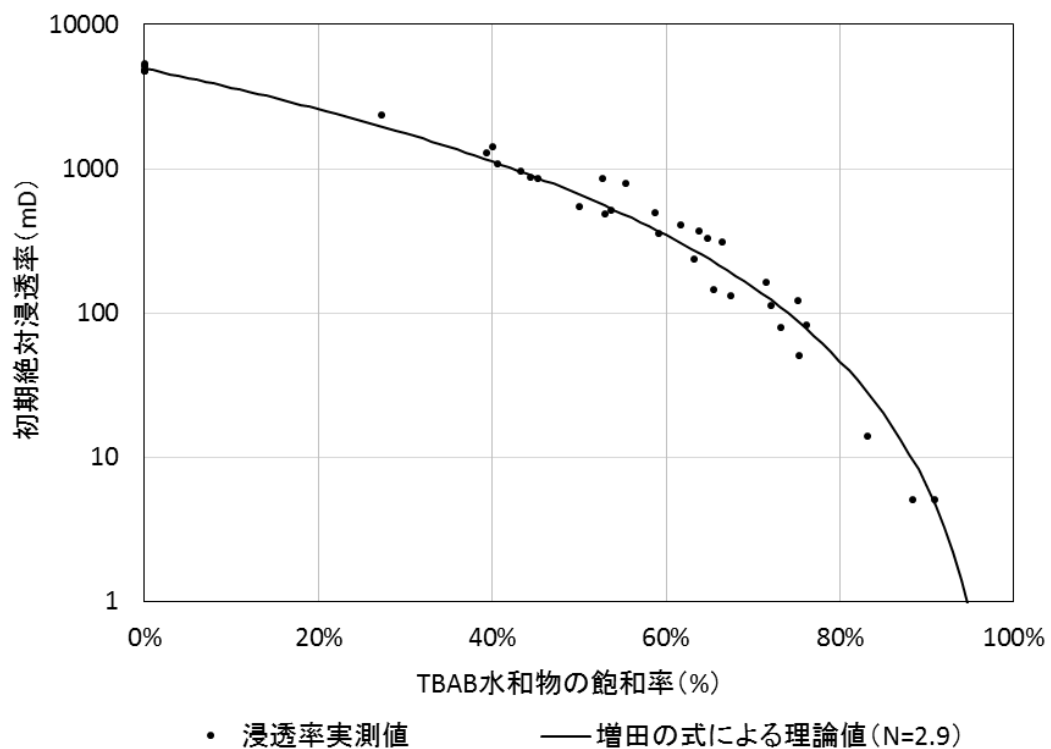


図 6-4 TH 飽和率に対する初期有効浸透率の分布

6.4 氷粒子による i-BH の生成特性

i-BH は、生成および維持するための温度圧力条件が緩いものの、生成するまでの誘導時間が長いことや、接着剤やグリース等を有する条件で著しく生成が妨害される（早野・内田，1963）など、実験条件によっては生成が困難なことがある。それに加え、本実験で使用した燃料ガスには少量のノルマルブタンが含まれるが、それが i-BH の生成に影響を与えるかは未知である。そのため、本研究では、i-BH の生成装置（4号機 A，4号機 B）を用いて、i-BH の生成時の誘導時間と経時生成率といった特性を解明する予備実験を行った。実験の操作は、1) 事前に反応温度（-5℃）まで冷却した圧力容器（4号機 B の場合はコアセル）内に氷粒子を充填する、2) 容器内の空気を真空ポンプにより排出する、3) イソブタンを含む燃料ガスを通気させる、4) 一定の時間を経過後、圧力容器を取り出し、常温の水槽に浸し排水法により分解ガスの体積を求める、という手順で行った。その際、投入した氷粒子の質量と回収した分解ガスの体積から、式 6-2 により i-BH の生成率を求めた。また、粒径が異なる氷粒子を用いた場合の i-BH 生成率からは、氷粒子の表面に生成した i-BH 薄層の厚さも推定した。その実験パラメータを表 6-4 に示す。

$$R_H = \frac{V_R}{V_{iB-MAX}} = \frac{V_R}{m_{iBH-MAX}/\rho_{(iB)g} \times 1000} = \frac{V_R}{m_{水}/(17M_{水}) \times M_{iB}/\rho_{(iB)g} \times 1000} \quad (6-2)$$

なお、 R_H = i-BH の生成率、 V_R = 回収したイソブタンガスの体積（コアセルの容積分を考慮した補正值，常温常圧，mL）， V_{iB-MAX} = 理論上 i-BH に貯蔵できる最大のイソブタンガス体積（常温常圧，mL）， m_{iB-MAX} = 理論上 i-BH に貯蔵できる最大のイソブタン質量（g）， $\rho_{(iB)g}$ = 常温常圧におけるイソブタンガスの密度 = 2.487 g/L（安全データシートより）， $m_{水}$ = 投入した水または氷の質量（g）， $M_{水}$ = 水の質量分子量（18.015）， M_{iB} = イソブタンの分子量（58.12）。

表 6-4 氷粒子による i-BH 生成実験のパラメータ

| 項目 | パラメータ |
|--------|--|
| 使用装置 | 4号機 A, 4号機 B 併用 |
| 水原料 | 蒸留水による氷粒子 3種類： 極細（粉状） 普通（約 1mm） 極粗（約 3mm） |
| ガス原料 | 寒冷地用 CD 缶燃料ガス （イソブタン 95%） |
| 作製方法 | （真空吸引後に）氷粒子通気法 |
| 反応温度 | -5.0℃ |
| 反応圧力 | 上記温度におけるガスの蒸気圧 |
| 反応時間 | 6～24 時間，および 1～7 日 |
| ガス回収方式 | 温水による加熱・排水法（図 6-5） |

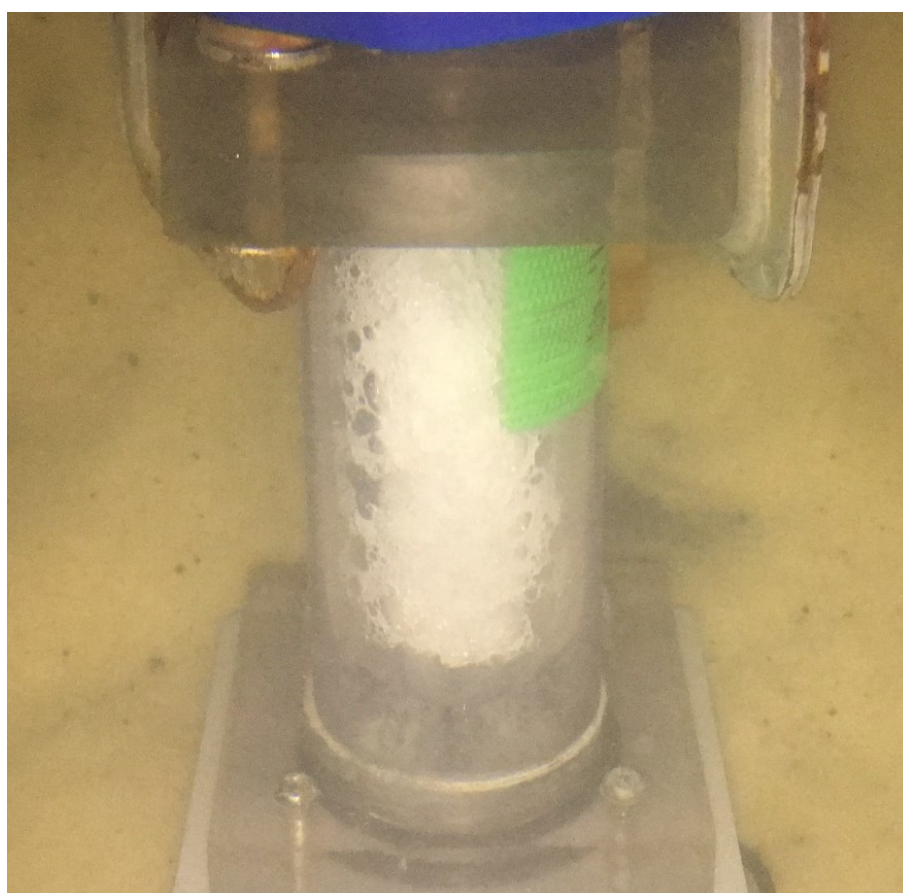


図 6-5 i-BH が分解し気泡を放出する様子

図 6-6 に，i-BH の生成過程におけるコアセル内の温度変化と i-BH の経時生成率を示す．通気開始から約 24 時間後には，容器内の温度が一気に上昇し，一時的に i-BH が存在できる上限温度(2℃)まで上昇したことを確認した．これは，i-BH の生成に伴う放熱によるものと考えられる．この現象が数時間程度続いた後に容器内の温度は冷却液に近い温度まで低下し，安定傾向に転じた．これは，氷粒子の表面に i-BH 層が形成したため，反応による放熱の速律が低下したことを意味する．すなわち，この条件における i-BH 生成のための誘導期間は約 24 時間であり，主な反応期間は 24～36 時間であることが分かった．以上のことから，この燃料ガスを 36 時間以上通気すれば確実に i-BH を生成できることが明らかになった．

一方，通気時間に対する i-BH 生成率の推移については，通気開始から 21 時間までは生成率が 0%であったが，24 時間後には急速に上昇し，その後緩やかに上昇する傾向に転じた．すなわち，誘導期間はおよそ 21～24 時間程度で，温度変化から推定した反応開始時刻と概ね一致した．また，1 日目(24 時間)の生成率を基準とすれば，2 日目が 1.75 倍，4 日目が 2.32 倍，7 日目が 2.63 倍であることから，i-BH の生成反応はピークを過ぎた後にも少なくとも数日間続いたことが明らかになった．しかし，長期間の通気は実験の都合上非効率であるため，本研究における後続の実験では通気時間を原則 4 日以上と定めた．

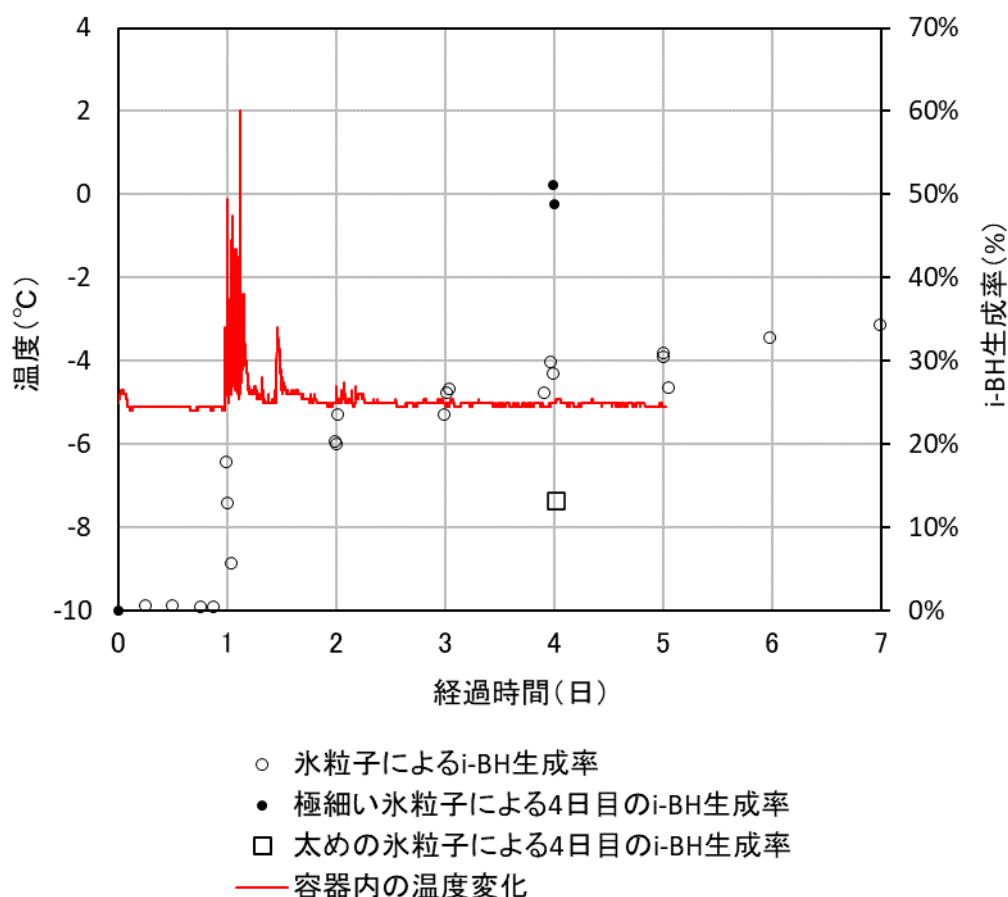


図 6-6 経過時間に対する圧力容器内の温度変化と i-BH 生成率

また，反応に用いる氷粒子の粒径を変えながら，4日後の i-BH 生成率を計測してみた．その結果，氷粒子の直径が小さいほど i-BH の生成率が高く，粉状の氷粒子を用いた場合は約 50%の生成率を達成できた．さらに，氷粒子を球形と仮定した場合には，粒径と生成率の関係から，i-BH 薄層の厚さは約 52～69 μm であったと推定される．なお，実際の MH 層に近い粒径分布（中心粒径 $d_{50}=128 \mu\text{m}$ ）を有する砂供試体では，孔隙に存在する不飽和水または氷膜の厚みがこの数値を上回ることが考えにくいため，より高い i-BH 生成率を期待できると考えられる．

なお，実験に使用した燃料ガスにはノルマルブタンが少量に含まれるものの，1) 実験温度（ -5°C ）ではノルマルブタンが気化しにくいこと，2) ノルマルブタンは単独でハイドレートを生成できないこと，また 3) イソブタンはノルマルブタンを取り込まれる H 型

ゲージを生成できないことから,実験で回収した分解ガスにはノルマルブタンを含まないと推定した.すなわち,市販の寒冷地仕様の燃料用イソブタン(95%)を用いても,本研究の目的を達成するための i-BH を十分に作製可能であることを検証した(図 6-7).



図 6-7 本研究で作製した粒子状の i-BH が燃焼する様子
学術研究だけでなく,教育や広報のための一般演示実験にも安全
に活用できる.

6.5 砂供試体における i-BH の生成実験

MH 層を模擬した注入実験を行うには、MH 層と同様または近似した粒径分布を有する砂供試体に i-BH を均質に生成させる必要がある。そのため、本実験では、南海トラフの MH 層に近い粒径分布を有する東北珪砂 7 号 ($d_{50}=128\mu\text{m}$) を材料とし、以下に示す (1) ~ (5) の手順により i-BH 供試体の作製を試みた。その実験パラメータを表 6-5 に示す。

- (1) 多連式砂落下装置を用いて、水中落下法により砂供試体を作製する。
- (2) 定量排水装置により砂供試体に水蒸気飽和空気を圧入し、孔隙水を一部排出する。
- (3) 定量排水後の砂供試体を実験温度 (-5°C) で 12 時間以上冷凍し、残存した孔隙水を氷粒子または氷膜に転換させる。
- (4) 凍結した砂供試体を真空吸引後に燃料ガス (イソブタン 95%) を一定期間に通気させ、i-BH を生成させる。
- (5) i-BH 供試体を温水に浸し、回収した分解ガスの量から式 6-3 と式 6-4 により i-BH の生成率と飽和率を推定する。

$$R_H = \frac{V_R}{m_{\text{水}} / (17M_{\text{水}}) \times M_{iB} / \rho_{(iB)g} \times 1000} \times 100\%$$

$$= \frac{V_R}{(m_{\text{水}0} - \Delta m) / (17M_{\text{水}}) \times M_{iB} / \rho_{(iB)g} \times 1000} \quad (6-3)$$

$$S_{iBH} = \frac{V_{iBH}}{V_{\text{pore}}} = \frac{m_{iBH} / \rho_{iBH}}{V_{\text{pore}}} = \frac{m_{iB} / M_{iB} \times M_{iBH} / \rho_{iBH}}{V_{\text{pore}}}$$

$$= \frac{V_{iB} \times \rho_{iB} / M_{iB} \times M_{iBH} / \rho_{iBH}}{V_{\text{pore}}} \times 100\% \quad (6-4)$$

なお、 R_H = i-BH の生成率 (%), V_R = 回収したイソブタンガスの体積 (コアセルの容積分と孔隙率を考慮した補正值, 常温常圧, mL), $m_{\text{水}}$ = 孔隙水または氷膜の質量 (g), $M_{\text{水}}$ = 水の分子量 (18.015), M_{iB} = イソブタンの分子量 (58.12), $\rho_{(iB)g}$ = 常温常圧におけるイソブタンガスの密度 = 2.487 g/L (安全データシート), $m_{\text{水}0}$ = 飽和状態に

おける孔隙水の質量（寸法と孔隙率から 18.67g と算出）， Δm = 排水前後におけるコアセルの質量差 = 排出された水の質量（g）， S_{iBH} = i-BH の飽和率（%）， V_{iBH} = 孔隙中にある i-BH の体積（mL）， V_{pore} = 孔隙の体積（mL）， m_{iBH} = 孔隙中にある i-BH の質量（g）， ρ_{iBH} = i-BH の密度（0.901g/cm³）（陈ほか，2001）， m_{iB} = i-BH に生成したイソブタンの質量（g）， M_{iBH} = i-BH の分子量（364.38）， V_{iB} = 回収したイソブタンガスの室温常圧における体積（mL）。

表 6-5 砂供試体における i-BH 生成実験のパラメータ

| 項目 | パラメータ |
|----------------|---------------------------------------|
| 使用装置 | 4号機 B |
| 供試体材料 | 東北硅砂 7号（ $d_{50}=128\mu m$ ），蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 排水のための 空気流量 | コアセルの横断面に対して（軸方向において） 圧入速度 = 1cm/s |
| ガス原料 | 寒冷地用 CD 缶燃料ガス（イソブタン 95%） |
| 作製方法 | （真空吸引後に）湿潤砂凍結通気法 |
| 反応温度 | -5.0℃ |
| 反応圧力 | 上記温度における混合ガスの蒸気圧 |
| 反応時間 | 1～7日 |
| ガス回収方式 | 温水による加熱・排水法 |

図 6-8 に，通気期間に対する砂供試体における i-BH の生成率の推移を示す。通気から 1 日目には，i-BH の生成率に大きなバラツキが見られたものの，2 日目以降のデータは収束していること，またいずれの時点においても氷粒子を用いた場合と比べて高い生成率を達成したことを確認した。これは，氷粒子の表面に存在する疑似水層により形態が徐々に変化し，水和反応開始時の実際の粒径すなわち表面積に不確定性があることに対し，砂供試体の孔隙に存在する氷の場合はこのような懸念がなく，かつ 6.3 の実験で使用した氷粒子と比べ粒子はるかに小さく，比表面積が大きいからである。また，4 日目には i-BH の平均生成率が 98.7% になり，6 日目には 100.0% に達したことから，グリースの存在による影響を受けることなく i-BH 供試体を作製可能であり，またその実用的な通気期間が 4～5 日であることが明らかになった。

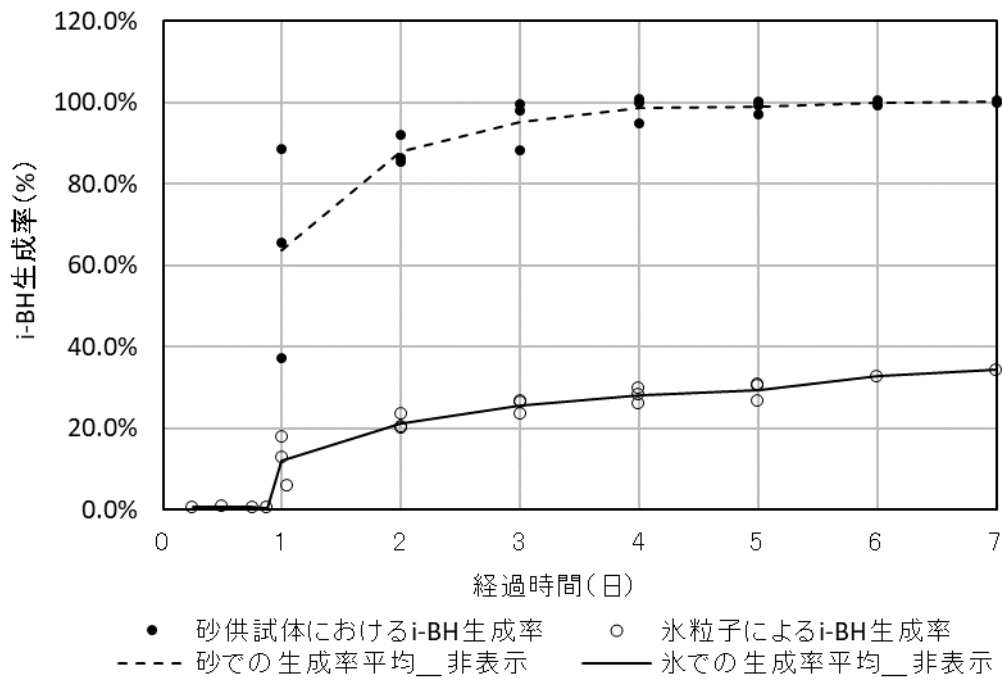


図 6-8 凍結した湿潤砂供試体における i-BH 生成率の推移

6.6 i-BH 飽和率の制御方法の検討

ガス通気法（湿潤砂凍結通気法）により i-BH 供試体を作成する場合，i-BH の飽和率の制御方法として，1) 水過量法と，2) ガス過量法が考えられる．前者は，真空吸引した凍結砂供試体に，i-BH の平衡曲線以上の圧力を持つイソブタンガスを通気し，i-BH を生成させる方法である．この場合，反応終了時にはその圧力が i-BH 平衡曲線上にあるため，コアセル内に i-BH と水とガスが共存し，i-BH の飽和率は式（6-5）によって求められる．

$$S_{iBH} = \frac{V_{iBH}}{V_{pore}} = \frac{m_{iBH}/\rho_{iBH}}{V_{pore}} = \frac{m_{iB}/M_{iB} \times M_{iBH}/\rho_{iBH}}{V_{pore}} \times 100\% \quad (6-5)$$

また，

$$\begin{aligned} m_{iB} &= m_{iB(sum)} - m_{iB(pore)} - m_{iB(pipe)} \\ &= m_{iB(sum)} - (V_{iB(pore)} + V_{iB(pipe)})\rho_{iB} \end{aligned} \quad (6-6)$$

なお， S_{iBH} = i-BH の飽和率（%）， V_{iBH} = i-BH の体積（mL）， V_{pore} = 総孔隙の体積（mL）， m_{iBH} = 孔隙中の i-BH の質量（g）， ρ_{iBH} = i-BH の密度（0.901g/cm³）（陈ほか，2001）， m_{iB} = 水と反応し i-BH に生成したイソブタンの質量（g）， M_{iB} = イソブタンの分子量（58.12）， M_{iBH} = i-BH の分子量（364.38）， $m_{iB(sum)}$ = 容器内に投入したイソブタの総質量（g）， $m_{iB(pore)}$ = 供試体の孔隙に充填したイソブタガスの質量（g）， $m_{iB(pipe)}$ = 配管やバルブなどコアセル以外の容積に充填するイソブタガスの質量（g）， $V_{iB(pore)}$ = 供試体の孔隙に充填したイソブタガスの体積，すなわち水以外の有効孔隙（mL）， $V_{iB(pipe)}$ = 配管やバルブなどコアセル以外の容積に充填するイソブタガスの体積（mL）， ρ_{iB} = 反応終了時のコアセル内の温度と圧力に対するイソブタガスの密度（g/cm³）．

この場合，供試体の孔隙の体積と水和反応で消費したイソブタンの質量を把握すれば，生成した i-BH の飽和率を推定することができる．しかし，消費したイソブタンの質量を算出するには，各コアセルに導入したガス量のほか，反応終了時のコアセル内のイソブタガスの密度を把握する必要がある．この密度は，温度と圧力の関数

であるため、コアセルごとに精密な制御と計測が求められる。また、反応終了時には氷が残存するため、浸透率計測などでガスを圧入する際に新たに i-BH を生成する可能性がある。よって、水過量法は本実験の目的を達成するのに限界がある。

一方、後者は、孔隙水に対して過量のガスを投入し、孔隙水を全部反応させることを前提とする方式である。この場合は、個々のコアセルにおけるガス圧力の精密制御やガス量の計測は不要であり、コモンレールにより全てのコアセルに同一の圧力でガスを供給することが可能である。また、反応終了時には、i-BH 薄層に覆われていない未反応の残存水が存在しないため、浸透率の計測などでガスを圧入しても新たに i-BH が生成する可能性が低い。以上の理由から、本研究では i-BH 飽和率の制御のためにガス過量法を採用した。

ガス過量法では、i-BH の生成率 $R_{iBH} = 100\%$ の際における i-BH 飽和率を、以下の式 6-9 により初期孔隙水の飽和率から予測できる。例えば、南海トラフでの開発対象とされる MH 層を模擬する $S_{iBH} = 80\%$ の i-BH 供試体を作成するには、通気前の初期水飽和率 $S_{水}$ を 60% まで下げる必要がある。また、地盤改良剤を容易に注入できるとされるハイドレート飽和率 = 60% 前後の供試体（劉ほか，2020）を作成するためには、初期水飽和率 $S_{水}$ を 45% まで下げる必要があることが分かる。

$$S_{iBH} = \frac{V_{iBH}}{V_{pore}} = \frac{m_{iBH}/\rho_{iBH}}{V_{pore}} = \frac{m_{水}/M_{水} \times M_{iBH}/\rho_{iBH}}{V_{pore}} \times 100\% \quad (6-7)$$

$$S_{水} = \frac{V_{水}}{V_{pore}} = \frac{m_{水}/\rho_{水}}{V_{pore}} \times 100\% \quad (6-8)$$

即ち、

$$S_{iBH} = S_{水} \rho_{水}/M_{水} \times M_{iBH}/\rho_{iBH} \times 100\% \quad (6-9)$$

なお、 $m_{水}$ = i-BH に生成した水の質量 (g)、 $M_{水}$ = i-BH 分子に含まれる水の分子量 (306.26)、 $S_{水}$ = 水の飽和率 (%)、 $V_{水}$ = 孔隙中にある水の体積 (mL)、 $m_{水}$ = 孔隙中にある水の質量、 $\rho_{水}$ = 水の密度 (1.0 g/cm³)。

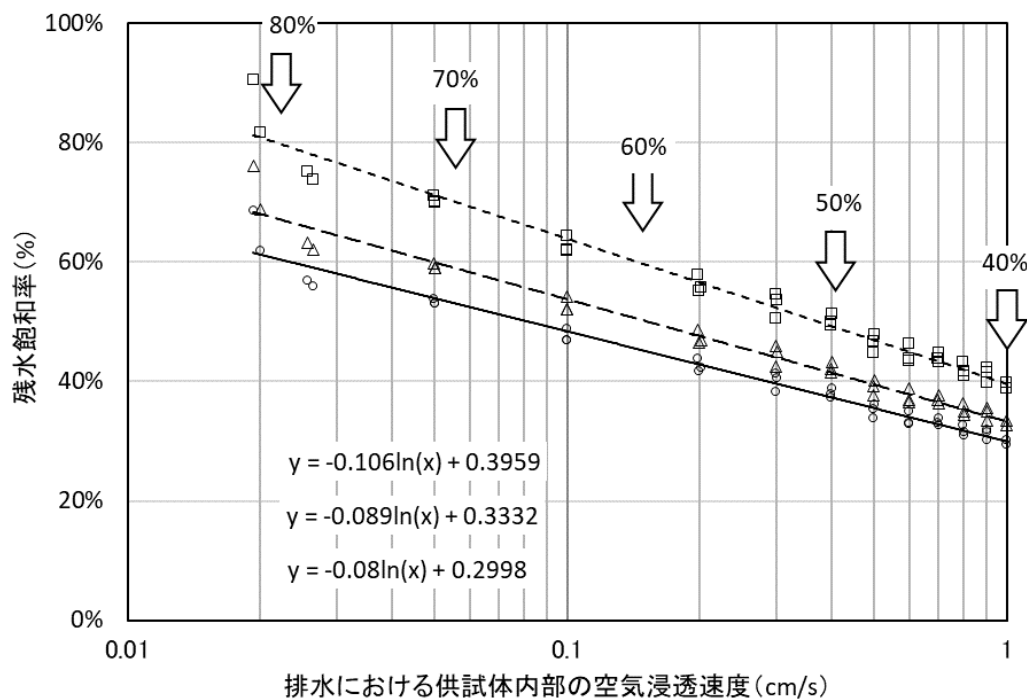
供試体の初期水飽和率を所期の数値まで低下させるためには、前章 5.6.10 に示す定量排水装置を使用した。排水の制御には、圧入レートによらず一定時間に空気を圧入する「定時間方式」と、累積圧入量を統一する「定総量方式」がある。前者は、圧入レートにより合計圧入量が大きく変わり、低レートの場合は排水が不十分になる可能性がある。そのため、本研究では後者の「定総量方式」を採用し、供試体の体積の 10 倍に相当する空気を圧入することに統一した。また、排水具合を示す空気の圧入速度を 0.1~1.0cm/s の 10 段階に設定し、空気の圧入速度に対する残存水含有量(残水飽和率)を求めた。なお、残水飽和率は、排水した供試体を -20℃ で急速冷凍後に計測した密度と、珪砂の密度および孔隙率から換算したものである。また、冷凍後の供試体の密度を速やかで正確に計測するためには、耐寒性と操作性が優れ、かつ供試体を押し出さずにコアセルと丸ごと計量できる新 3 号機を使用した。その実験パラメータを表 6-6 に示す。

表 6-6 定量排水試験のパラメータ一覧

| 項目 | パラメータ |
|-------------------|--|
| 使用装置 | 新 3 号機, 定量排水装置 |
| 排水用気体 | 水蒸気で飽和した常温空気 |
| 定量排水方式 | 定総量方式 |
| 空気圧入量 | 供試体の体積の 10 倍に相当する量 |
| 排水時の空気浸透速度 (cm/s) | 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1.0 |
| 残水飽和率の計算方法 | 急速冷凍後の供試体の密度から換算 |

図 6-9 に、空気の圧入速度に対する残水(氷)飽和率と理論上生成できる最大 i-BH 飽和率を示す。空気の圧入速度に対し、残水飽和率すなわち生成可能な最大 i-BH 飽和率が対数関係を示したことが分かった(式 6-10, 式 6-11)。また、計画 i-BH 飽和率が 70%以下、すなわち空気の圧入速度が 0.05cm/s 以上であれば、残水飽和率に対してかなりの制御精度を実現可能であることが明らかになった。一方、空気の圧入速度 $\leq 0.05\text{cm/s}$ の場合はデータのバラツキが大きくなり、計画 i-BH 飽和率 = 80% の供試体を正確に作製することが難しくなる。これは、制御弁と供試体の間に設けた加湿ユ

ニットの内部容積が大きく、極低速排水時における上流圧の制御が鈍いことと、上流圧（差圧）と排水に伴って変化する毛細管圧力との兼ね合いから、安定した流速制御が困難になるからである。



- 残水飽和率
- △ 残水による水の飽和率
- 残水により生成可能な最大i-BH飽和率

図 6-9 空気の浸透速度に対する残水飽和率，
残水飽和率および理論上生成できる最大 i-BH 飽和率

$$S_{\text{水}} = -0.08(\ln v) + 0.2998 \quad (6-10)$$

$$S_{iBH} = -0.106(\ln v) + 0.3959 \quad (6-11)$$

なお， v = 排水のための空気圧入速度 (cm/s)， S_{iBH} = 理論上生成可能な最大 i-BH 飽和率 (計画 i-BH 飽和率，%)。

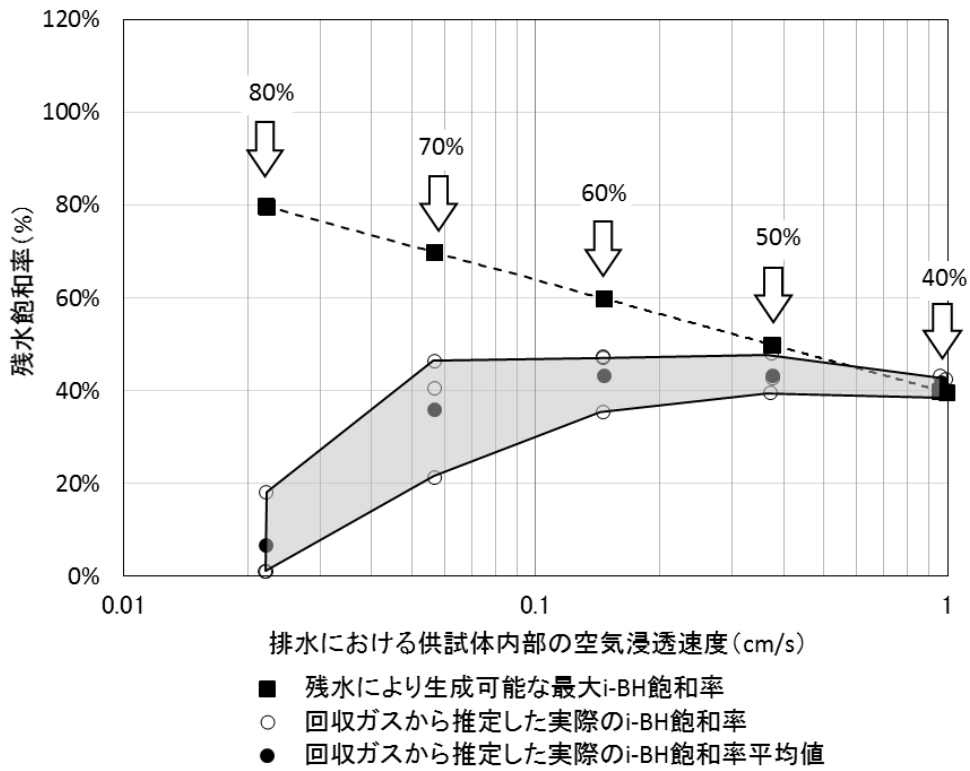
しかし、実際の水和反応では、すべての孔隙に効率よくガスを浸透させることが難しいため、実際の i-BH 生成率は 100%より低いと予想される。そのため、式 6-10 を参考に計画 i-BH 飽和率 S_{iBH} =

40%～80%の供試体を作製し、その後温水により i-BH を分解させ、回収したガスの量から実際の i-BH 生成率と飽和率を推定する実験を行った（表 6-7）。その結果を図 6-10 に示す。なお、回収したガスには、孔隙にあった未反応のガスや温度変化によるガス体積の変化分も含まれるため、実際の i-BH 由来の分解ガスの量を求める際にこれらの影響要因を除外または補正した。

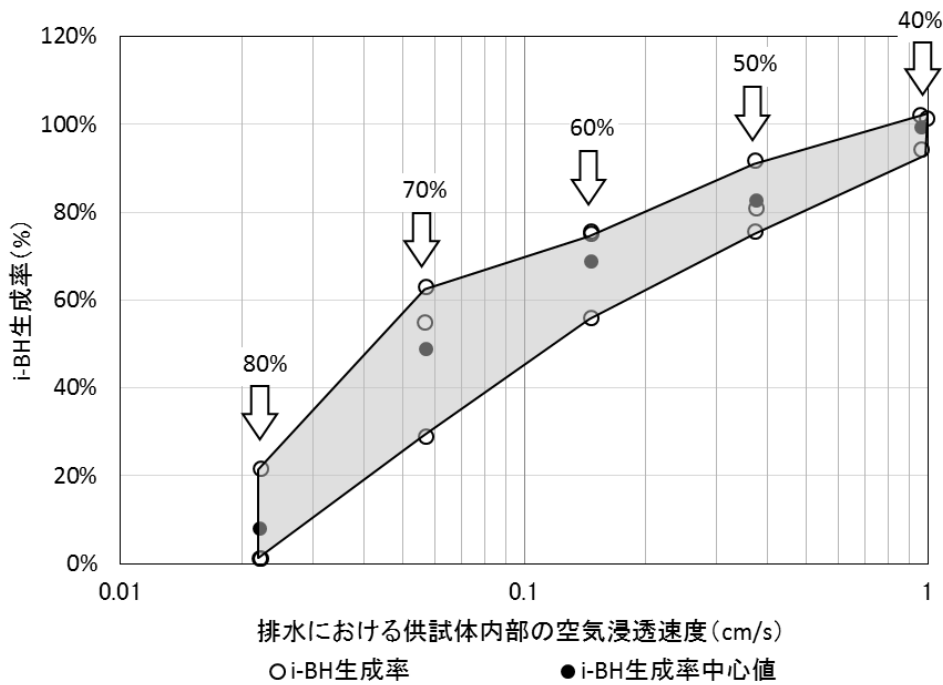
表 6-7 空気の圧入速度に対する実際の i-BH 生成率と飽和率を求める実験パラメータ一覧

| 項目 | パラメータ |
|-------------------|--|
| 使用装置 | 4号機 B, 定量排水装置 |
| 排水時の空気圧入速度 (cm/s) | 0.9620, 0.3750, 0.1460, 0.0568, 0.0221 |
| 計画 i-BH 飽和率 (%) | 40, 50, 60, 70, 80 |
| ガス通気期間 | 96±2 時間 (約 4 日間) |
| 分解ガス回収法 | 温水分解・排水法 |

実験の結果、 S_{iBH} = 40%の供試体では i-BH の平均生成率はおおむね 100%に達したが、計画飽和率が高くなるにつれて生成率が低下し、実際の i-BH 飽和率が 50%を超えることがなかった。また、 S_{iBH} = 70%の場合は、温水中で気泡が発生した箇所は供試体の上部（ガス供給側）に集中し、奥側には i-BH の生成が極めて少ないことを確認した。さらに、 S_{iBH} = 80%の場合は、1例を除き i-BH の生成がほとんど確認できなかった。これは、残水飽和率が高いほどガス相が不連続になりやすく、また、氷が融解して i-BH に生成する際にも一部の孔隙を閉塞させる確率が高くなるためと考えられる。特に、この現象が上流側で発生すると、それより先の部分にはガスを供給できなくなり、i-BH 生成率の低下や不均質につながる。実際の運用では、このような不確定性を避ける必要があるため、実用的な最大 i-BH 飽和率は 40～50%程度に止まると考えられる。また、この値より i-BH 飽和率が低い供試体を作製する場合は、低流量側よりも高流量側での排水を推奨する。これは、不十分な排水による孔隙閉塞や不均質のリスクを回避できることと、排水作業の時間を短縮できる利点があるからである。



(a)



(b)

図 6-10 空気浸透速度に対する実際の *i*-BH 飽和率と生成率
 (a) *i*-BH の飽和率, (b) *i*-BH の生成率

6.7 供試体の温度が安定になる時間の計測

本研究で使われる i-BH 供試体は、 -5°C の恒温水槽 A で冷凍、通気を経て作成されるが、各種薬剤の注入や i-BH 分解前の浸透率の測定は 0°C の恒温水槽 B で行う。その際、供試体を十分に温めない状態で薬剤を注入すると、薬剤に含まれる水分の凍結や分離を引き起こし、氷による目詰まりや薬剤の固化効果の低下に繋がる可能性がある。また、この状態でイソブタンガスを用いて浸透率を測定すると、ガスが供試体の中で液化し、下流側のガス流量値が過大になるなどの測定障害が生じる可能性がある。このようなトラブルを回避するよう、供試体の温度を $-5^{\circ}\text{C} \rightarrow 0^{\circ}\text{C}$ に移転させる際に所要する安定時間を測定した。

測定では、4号機規格のコアセルのうち、供試体の中心部分に温度センサーを設置できる 41番、43番を用いて、冷却恒温水槽 A から B まで移転した後の温度変化を記録した。その結果を図 6-11 に示す。移転から約 1 時間が経った時点で、両供試体の中心温度が 0°C 付近に達し、その後の 2 時間にわたり明確な変化が見られなかった。すなわち、この規格のコアセルで作製した i-BH 供試体を 0°C の恒温水槽で 1 時間以上温めれば、実験温度 (0°C) 付近に安定させることができると考えられる。ただし、この温度変化には、温度センサーに繋がるケーブルの金属芯線を伝わって供試体の内部に入った熱が含まれる可能性 (図 6-12) を排除できないため、念のため、本手順における温度安定時間を 2~3 時間と定めた。

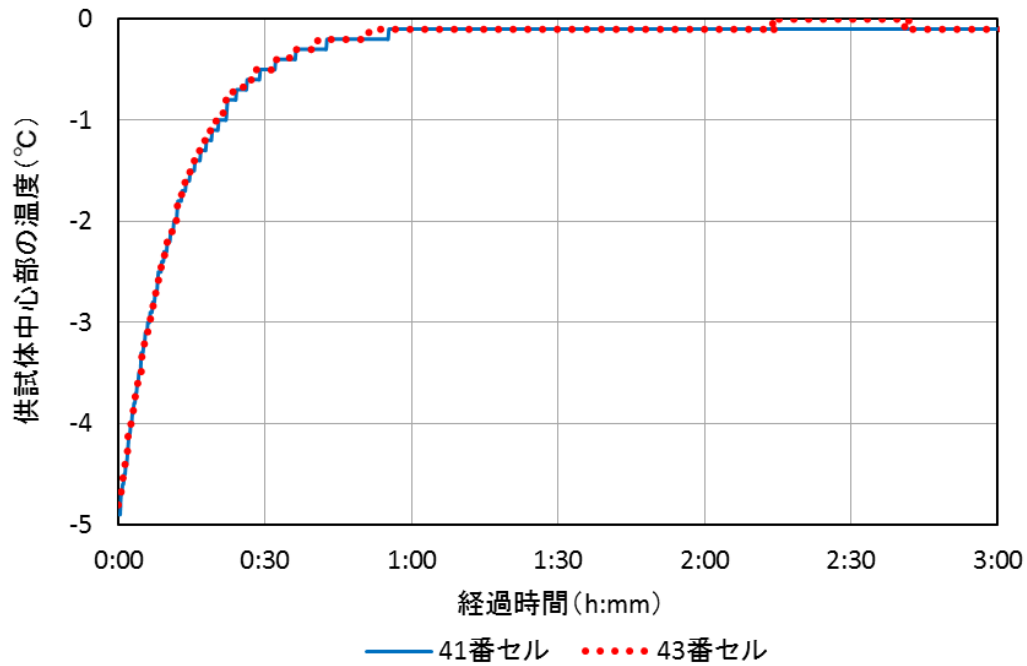


図 6-11 供試体の温度が $-5^{\circ}\text{C} \rightarrow 0^{\circ}\text{C}$ に安定するまでの
所要時間の計測結果

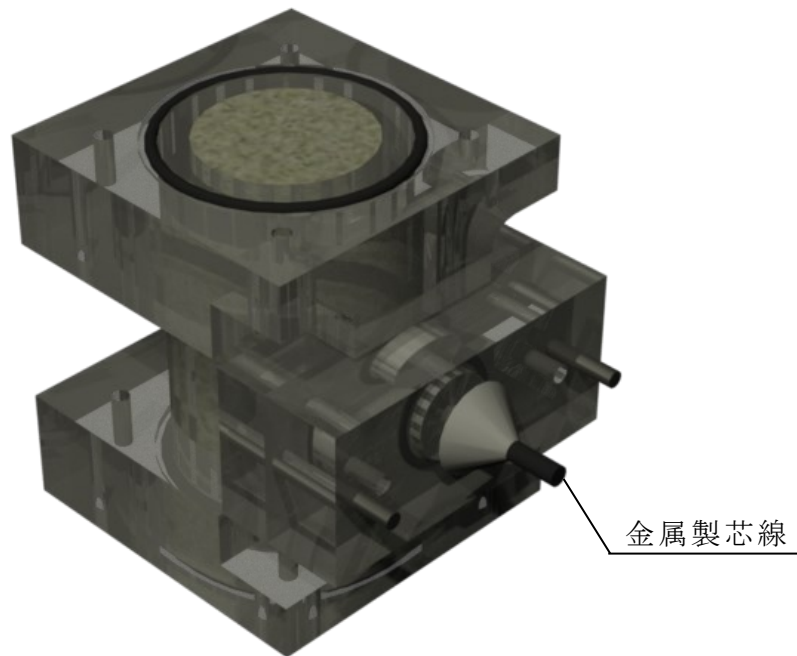


図 6-12 温度センサー付きの 41 番，43 番コアセル (CG 図).
温度センサーのケーブルはビニール被覆層が薄いため，冷却水による温度変化が容易に芯線まで伝わる.

6.8 ガス種による浸透率計測値の補正係数の検討

i-BHを含む供試体の有効浸透率は前述 5.6.13.3 の専用測定装置を用いて測定するが、イソブタンガスに対応できる精密流量計は一般市販されていないため、同装置に使用した汎用型気体流量計（GF-1010）による測定値から、真の浸透率に変換するための係数を求める必要がある。そのため、異なる浸透率を有し、かつ常温で計測可能な i-BH を含まないデモストレーションコア（以下：デモコア）を複数本作製し、空気とイソブタンを計測流体としてそれぞれ試験測定を行った。その試験パラメータを表 6-8 に示す。なお、イソブタンの粘度値には、図 5-39 に基づく実験式により、 $0.0069\text{mPa}\cdot\text{s}$ を採用した。

表 6-8 浸透率の変換係数を求める試験パラメータ

| 項目 | パラメータ |
|---------------|-------------------------------------|
| 使用装置 | 3号機（コアセル部のみ）、 i-BH 供試体向けの浸透率測定装置 |
| デモコアの寸法 | 直径 29.95×長さ 60.00～68.00（mm） |
| 孔隙率 | 未計測 |
| デモコアの作製法 | 直接装填・突き固め法 |
| デモコアの浸透率 | 22.5～389mD |
| デモコアの浸透率の調整方法 | 1) 粒径分布調整法 2) 突き固め具合調整法 |
| 測定流体* | 空 気（25℃） イソブタン（0℃） |

※：ガス種を切り替える際に一旦真空吸引を行う。

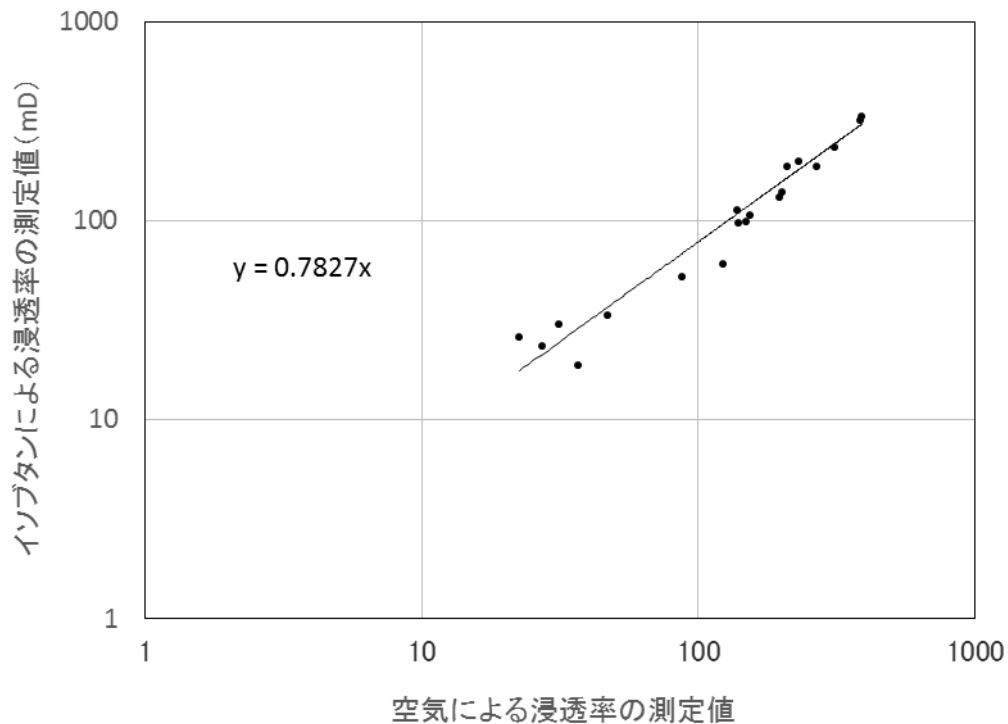


図 6-13 空気（20℃）－イソブタンガス（0℃）による浸透率測定値の関係

図 6-13 には，空気（20℃）－イソブタンガス（0℃）による浸透率の測定結果の関係を示す．本研究で多用する数十～数百 mD の範囲においては，両者は概ね線形関係を示しており，イソブタンガスによる計測値は概ね空気による計測値の 0.7827 倍であることが明らかになった．すなわち，真の絶対浸透率は，イソブタンガスによる見掛け浸透率の $1/0.7827 = 1.278$ 倍であることが分かる．なお，この換算係数は，ガス種による流量計の演算誤差のほか，配管部，バルブ，およびコアセル両端の多孔板部における流動抵抗も反映しているため，あくまで本実験システムに適用するものであることを留意されたい．

第 7 章 本実験

本手法を MH 層に応用させるためには、実際のハイドレートを含む砂層試料での適用性を検証しなければならない。そのため、第 5 章に示す実験装置群を用いて、TH または i-BH を含む供試体を作製し、本手法の適用性や影響要素等に係る定量実験を行った。本章では、これらの実験の結果と結論を示す。

- ハイドレート層における本手法の適用性の検討
- 本手法の効果への影響要素の検討
- ケーススタディ

7.1 ハイドレート層における本手法の適用性の検討

本手法を MH 層に応用させるためには，第 4 章に示す 4 つの課題を解明しなければならない．

- (a) 改良剤が MH 層に注入できること．
- (b) 注入された改良剤が地層条件下で MH 層を固結できること．
- (c) 固結された MH 層が十分な浸透性を有すること．
- (d) MH が分解しても，改良された砂層（改良体）またはそれを補修するための充填体が強減圧に耐えられる強度を有すること．

本節では，まず TH 供試体を用いて，課題 (a) について検証した．次に，その供試体を養生後の性状と物性からは，課題 (c) (d) すなわち改良体の浸透性と強度について検証した．なお，TH を含んだ供試体は改良剤の固結の可否によらず自立可能な強度を有するため，課題 (b) (固結可否) については，TH を分解させた後の供試体の強度を用いて評価した．また，純正の改良剤によるハイドレート層への注入性や安定化能力の限界に着目し，高いハイドレート飽和率を有する砂層を対象にこれらの性能を向上させる前処理方法を考案した．その効果についても，TH 供試体を用いて検証した．さらに，前処理工程では大量の分解ガスが発生するため，その挙動や適用性への影響について i-BH 供試体を用いて検証した．

7.1.1 改良剤の注入可否

表層地盤とは異なり，MH 層の場合は孔隙の大半が MH により充填されている．特に，南海トラフの開発対象とされる MH 層では飽和率が 80%にも達しており，改良剤の注入や流体の生産のための有効孔隙が非常に限られる．このような条件において改良剤の注入可否を検証するためには，模擬ハイドレートにより 80%またはそれ以上の飽和率を有する模擬砂層試料を作製する必要がある．そのため，本実験では TH を模擬ハイドレートとし，式 (5-5) により決めた初期濃度を有する TBAB 溶液に東北珪砂 7 号を落下させ，3°C を維持した冷水中で 24 時間以上冷却することで， $S_{TH}=40\% \sim$

80%の模擬ハイドレート供試体を作製した。その後、これらの供試体には、5w%のTBAB平衡溶液を用いて作製した濃度=20w%の改良剤を注入圧力=15kPaにて注入し、その注入レートと累積注入量を計測した(表7-1)。

図7-1に注入実験の結果を示す。 $S_{TH} \leq 60\%$ の供試体には支障なく注入できたが、 $S_{TH} \geq 70\%$ の場合は注入レートが著しく低く、また途中から止まったことが分かった。そのうち、 $S_{TH} = 70\%$ の供試体では下流側に改良剤が到達したのに対し、 $S_{TH} = 80\%$ の場合は極僅かしか改良剤の到達が確認できなかった。これは、TH飽和率の増加に伴い有効孔隙が細くなり、改良剤粒子による目詰りが起こり、供試体を透過できなくなったためである。一方、 $S_{TH} \leq 60\%$ の供試体においては、粒子の目詰りによる注入レートの低下が観測されず、注入停止までは安定したレートを示したことが明らかになった。ただし、TH飽和率ごとの有効浸透率に対し、初期注入レートは必ずしも同等な倍率を示すとは限らない。これは供試体の両端に設置するフィルタや注入装置自体の配管における流動抵抗により、低飽和率すなわち大流量側の注入レートが過小評価される傾向があるためと考えられる。

表7-1 改良体の作製および注入・養生のパラメータ

| 項目 | パラメータ |
|-------------|---|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂7号, TBAB溶液 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | TH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 40%~80% |
| 改良剤主剤濃度 | 20w% |
| 配合剤濃度 | 0.3w% |
| 注入圧力 | 上流圧: 1atm+15kPa 下流圧: 大気開放(1atm) 差圧: 15kPa |
| 養生温度 | 3°C |
| 養生期間 | 7日間 |

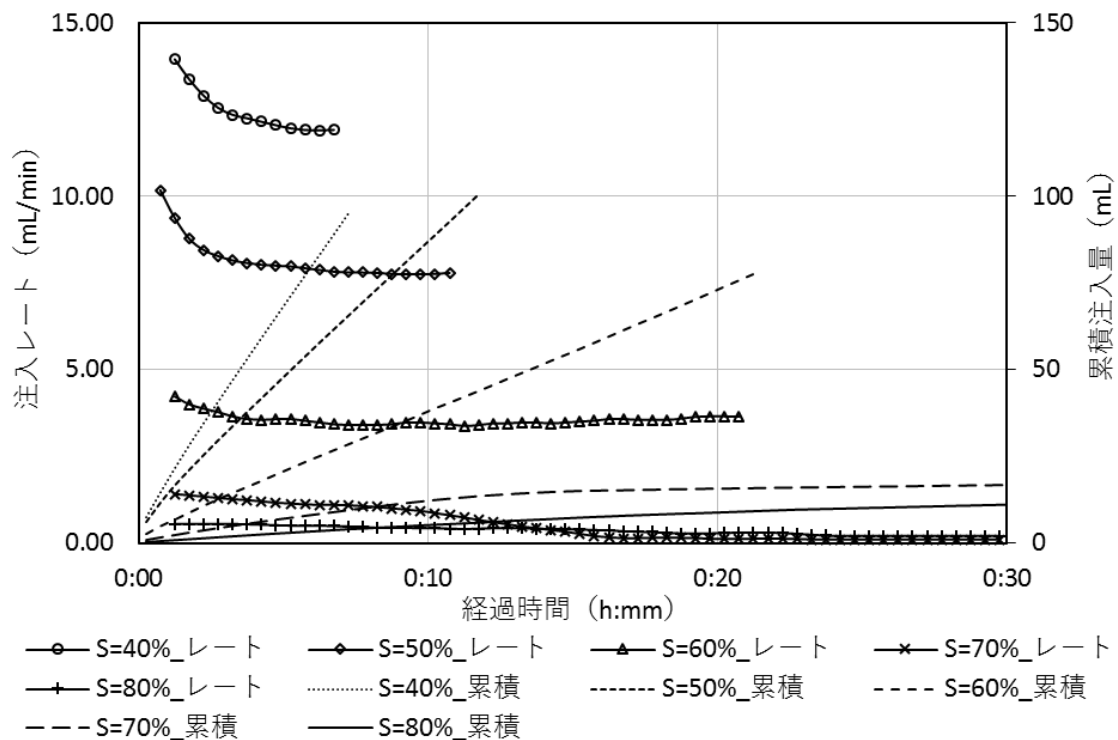


図 7-1 供試体 ($S_{TH} = 40\% \sim 80\%$) における注入レートと累積量の推移

また、生産井の坑径を 24cm と仮定し、30min 累積注入量から式 7-1 により円筒状に注入する場合の改良剤の到達半径を算出した (表 7-2)。 $S_{TH} \geq 70\%$ の場合は、いずれも到達可能半径 = 13cm と推定したが、改良剤粒子の目詰りによるフィルタ効果を加味すれば、実際の注入距離は僅か数 cm に止まる。これでは出砂を有効に止められるとは言い難い。一方、 $S_{TH} \leq 60\%$ の場合は人為的に注入を停止させたが、停止時点までは目詰りによるレートの低下が見られなかったことから、少なくとも計算通りに厚さ > 30cm (直径 > 84cm) の改良体を作製できることを意味する。

$$R = \sqrt{\frac{8rV}{\pi d^2 \phi (1 - S_H)} + r^2} \quad (7-1)$$

$$T = R - r \quad (7-2)$$

なお、 R = 改良剤の到達半径 (cm)、 r = 坑井半径 (cm)、 V = コア実

験における累積注入量 (mL), d =供試体の直径 (cm), S_H =ハイドレートの飽和率 (%), ϕ =孔隙率 (%), T =坑壁からの浸透距離 (改良体の厚さ, cm).

表 7-2 TH 供試体への注入可否の評価一覧

| TH 飽和率 (%) | 推定有効浸透率 (mD) | 注入可否判断 | 30min 累積注入量 (mL) | 推定浸透距離 (cm) |
|------------|--------------|--------|------------------|-------------|
| 40 | 1125 | ○ | 100.0* | 28* |
| 50 | 663 | ○ | 100.0* | 32* |
| 60 | 347 | ○ | 79.9* | 32* |
| 70 | 151 | △ | 16.6 | 13 |
| 80 | 47 | × | 11.1 | 13 |

※人為的に注入を停止した。

以上の結果から, 本研究で用いた従来のセメント系地盤改良剤は, 初期有効浸透率 $\geq 350\text{mD}$ のハイドレート層が注入限界であると推定した。例えば, MH 層を構成する砂の中心粒径 $d_{50} = 128.8 \mu\text{m}$ の場合は, MH 飽和率 $\leq 60\%$ であれば対応できると考えられる。一方, これより飽和率が高い, または粒径が細かい MH 層の場合は, その注入効果を高めるために何らかの施策を打つ必要があることが明らかになった。

7.1.2 改良剤の固化可否および改良体の物性

次に，課題（b）～（d），すなわち改良体の固化可否と固化後の物性を検証するためには，前記 7.1.1 の供試体を 3℃ の冷却液中で 7 日間養生し，その物性を測定した．物性の測定では，まず，冷水中で TH を有する状態での有効浸透率を測定した．その後，温水により TH を分解させ，TH を含まない状態の有効浸透率と一軸圧縮強度を測定した．その結果を図 7-2 に示す．

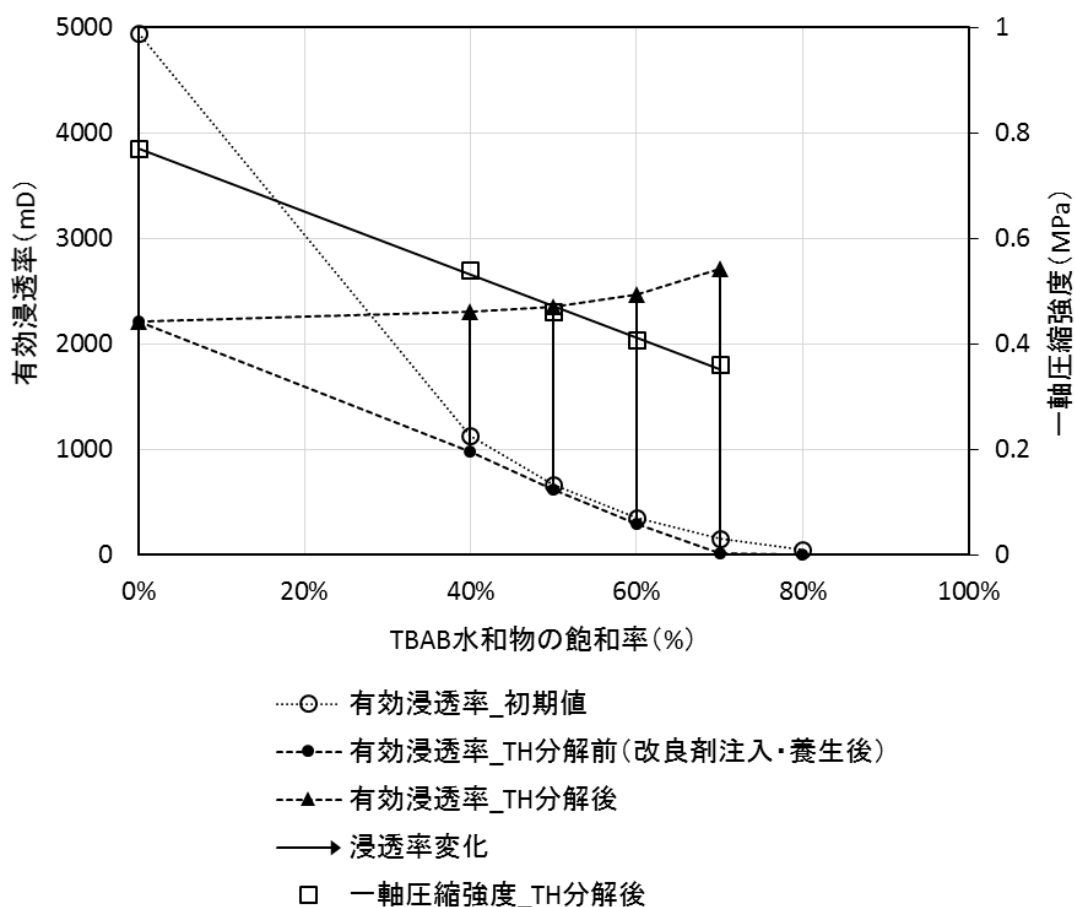


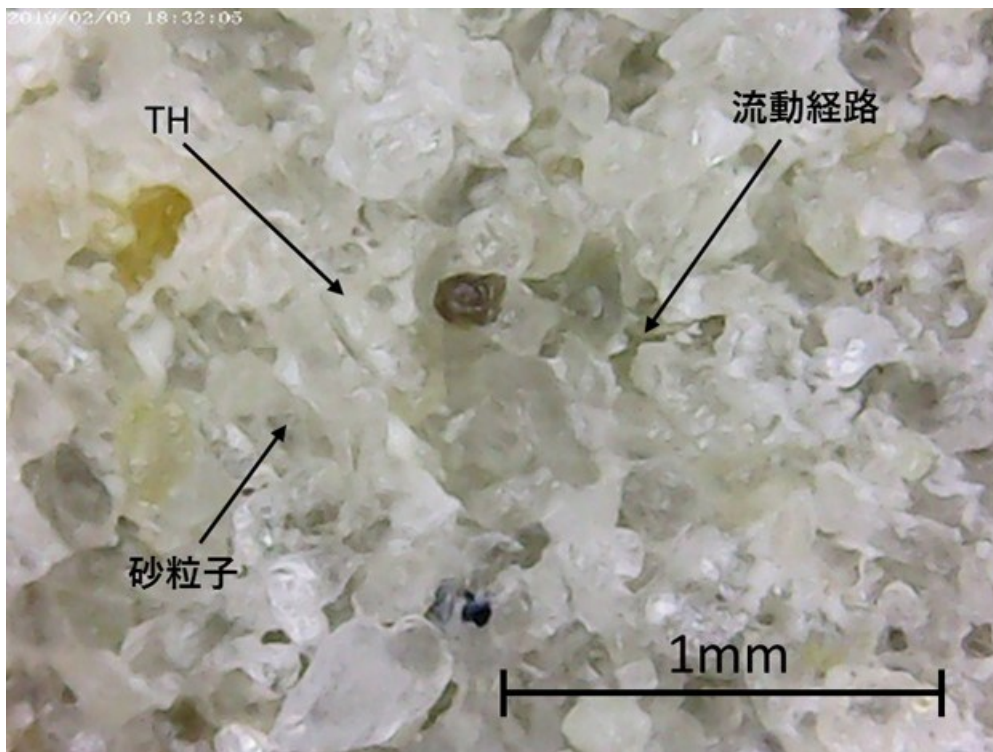
図 7-2 固結した供試体の TH 分解前後の物性値

TH 分解前（改良剤注入・養生後）の有効浸透率は，いずれの飽和率を有する供試体においても注入前の初期値と比べて低下したことを確認した．そのうち， $S_{TH} \leq 60\%$ の供試体では，TH 分解前の浸透率は初期値より僅かに下回ったが，その低下幅は参照実験（ $S_{TH} = 0\%$ ）における約半減と比べ微弱なものであった．これは，改良

剤により孔隙を一部充填したものの、改良剤の水和反応により発熱し、一部の TH を分解させたためと考えられる。一方、 $S_{TH} \geq 70\%$ の場合は、TH 分解前の有効浸透率は 10mD 未満と極めて低いことが確認された。これは、改良剤粒子により目詰りを起こし、孔隙の通路が塞がれたこと、また注入できた改良剤の量が少なく、その発熱による影響も微弱であったことが原因と考えられる。

また、TH 分解後の有効浸透率は、いずれも TH 分解前と比べ遥かに大きく、2000mD 以上に達したことが分かった。また、初期 TH 飽和率が高いほど、TH 分解後の浸透率が大きくなることも明らかになった。これは、初期 TH 飽和率が高いほど改良剤の注入性が悪く、孔隙に留まって流動障害となる改良剤粒子が少ないためである。さらに、初期 TH 飽和率が 80% に達すると改良剤の注入はほぼ不能になり、TH 分解後には供試体の強度を維持できず、浸透率を測定できなかった。

図 7-3 に、TH 分解前後の供試体 ($S_{TH} = 60\%$) の顕微鏡写真を示す。TH 分解前には、孔隙が TH により充填され、流動通路が狭まることを確認した。一方、TH 分解後には、孔隙に存在した TH が消失し、流動通路が大幅に拡大したことが分かった。当然、TH が充填されている分、孔隙に注入できた改良剤が少なく、その改良剤と砂粒子との接触面積も限られたことから、TH を含まない供試体と比べ強度は期待できない。例えば、TH を含まない参照実験 ($S_{TH} = 0\%$) では、改良剤の注入から 7 日後の強度が 0.77MPa であったのに対し、 $S_{TH} = 50\%$ の場合は 0.46MPa に止まった(図 7-2)。また、初期 TH 飽和率が高いほど TH 分解後の一軸圧縮強度が低くなる傾向を確認した。なお、これらの強度値は、セメント系改良剤による一般的な強度(材齢 7 日に約 3~4MPa)より明らかに弱かったが、これは TH の生成と維持のために養生温度を低めに設定し、セメントの水和反応を抑制したためである。ただし、南海トラフの MH 層の場合は、地層温度 = 13℃ と改良剤の水和反応に十分な温度を有することから、本手法による浸透性と強度を両立した改良体の形成は十分可能であると考えられる。図 7-4 に、TH 分解後の浸透率測定時および一軸圧縮試験後の供試体の一例を示す。



(a)



(b)

図 7-3 TH 分解前後の供試体 ($S_{TH} = 60\%$) の顕微鏡写真
(a) 分解前, (b) 分解後



(a)

(b)

図 7-4 本手法による供試体の一例 ($S_{TH}=60\%$)

(a) 浸透率計測時, (b) 一軸圧縮強度計測後

7.1.3 注入効果向上手法の提案と検証

ここまでは、本手法はハイドレート飽和率 $\leq 60\%$ の砂層には十分適用可能であることを確認した。しかし、開発対象とされる南海トラフの MH 層では、MH の飽和率 $S_{MH} \geq 80\%$ の個所も多い（山本ほか，2013）。このような高飽和率の MH 層に本手法を応用させるためには、1) 低浸透率の地盤に対応可能な溶液型改良剤を選定する、または 2) MH 層の飽和率をある程度低下させてから注入する、の 2 択になる。

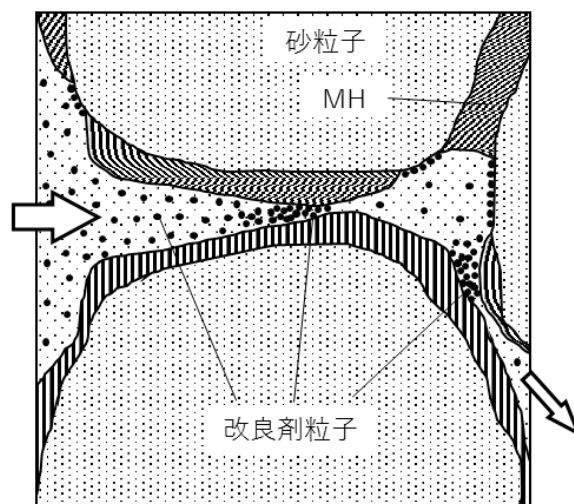
(1) に関しては、章節 2.3.3 に示した通り、溶液型の地盤改良剤は浸透能力が優れるものの、改良体の低浸透率、低強度、経年劣化という欠点から、MH 層の安定化改良には適しないと判断した。そこで、本研究では (2) に着目し検討した。もし、改良剤の注入前、あるいは注入中の MH 飽和率を 80% から 60% 以下に低下させれば、本手法の適用性が十分に期待できると考えられる。

貯留層の MH 飽和率を下げる方法、すなわち、MH を分解させる方法としては、加熱法、減圧法、異種ガス置換法、およびインヒビター圧入法等が挙げられる。このうち、減圧法は MH の分解促進に最も有効であり、かつ他の手法と比べエネルギー収支の面において優れている。しかし、減圧法の実施にあたっては、坑内にポンプやガス分離装置を設置する必要がある、そこに改良剤注入ツールを追加で降ろすスペースを確保することは困難である。仮に、改良剤を注入する前に一旦ポンプを引き上げる場合においても、減圧中止の間に坑内または坑井近傍に MH が再生成し、孔隙を塞ぐリスクが考えられる。さらに、減圧の具合により坑壁が一部崩壊した場合は、改良剤注入ツールが十分に機能できないことも想定される。

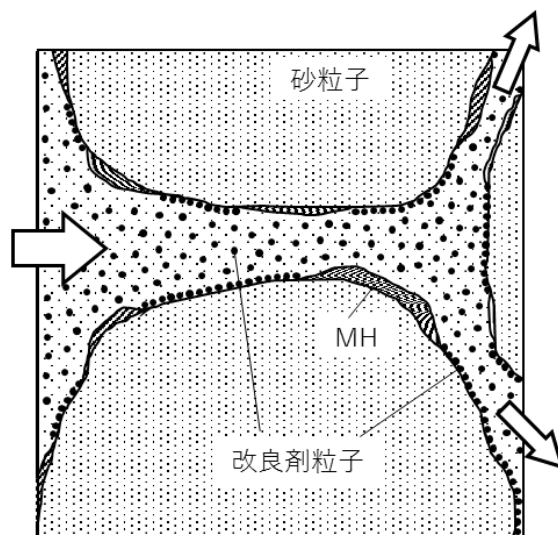
そのため、本研究では以下の 3 手法のうち、いずれかまたは複数を用いて改良体を形成することを提案した（劉・栗原，2019）。

(1) 地盤改良剤と、MH の分解を促進するインヒビターを、同時に MH 層に注入する（以下：同時注入法と記す）（図 7-5）。MH 層の初期飽和率が高い場合は初期有効浸透率が低い、インヒビターの溶液は粒子状の改良剤より浸透力に優れるため、改良剤粒子より先に進んでいく。このインヒビターは、MH の一部を分解させ、

孔隙を広げる役割を果たす。その後、MH層の浸透率は次第に改善され、粒子状の改良剤が浸透し始める。このように、インヒビターの浸透フロントの後に改良剤の注入フロントが追い、最終的に所定の改良半径に達する。なお、この方法は、インヒビターと改良剤との相性の関係上、同時に注入しても問題が生じない場合に限り実施できるが、減圧法に必要なポンプ類の設置と撤収が不要になり、かつ、一回の注入作業ですべての薬剤を地層に投入できる利点がある。



(a)

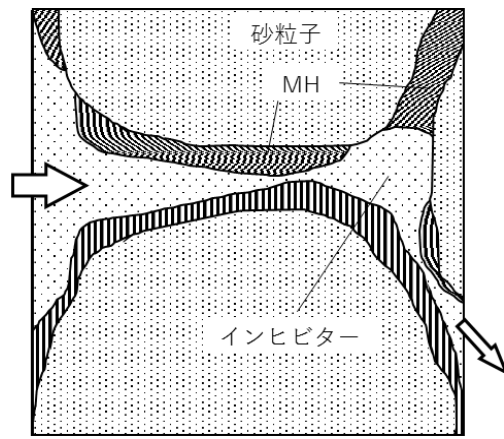


(b)

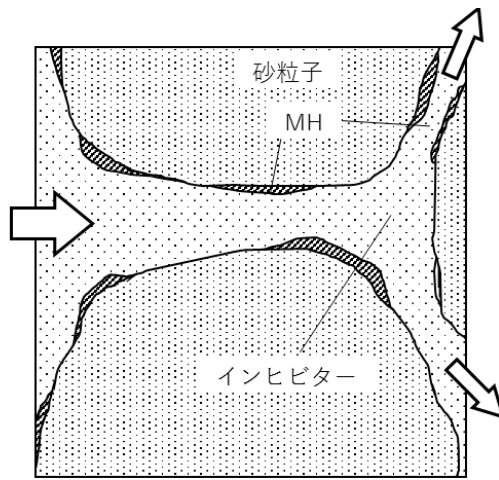
図 7-5 インヒビター同時注入法のイメージ
(a) 浸透率改善前, (b) 浸透率改善後

(2) 地盤改良剤を MH 層に注入する前に、予め、MH の分解を促進するインヒビターを MH 層に注入する（以下：先行注入法と記す）（図 7-6）。先行注入したインヒビターにより対象 MH 層の飽和率を低下させ、浸透率を改善しておく。その後、改良剤を別途注入し改良体を作製する。この場合は、インヒビターとする物質の選択範囲が広く、改良剤との使用割合や、それぞれの注入タイミングも任意に設定できる。例えば、インヒビターと改良剤を同時に注入した場合は、注入開始から浸透率の改善までの時間間隔が長いと、行き場がない改良剤が坑壁付近で固化してしまうリスクがあるが、先行注入によりこの問題点を回避できる。また、インヒビターの注入圧力とレートから MH 層の浸透率変化を推定し、それに基づき改良剤の注入タイミングを決めることも可能である。

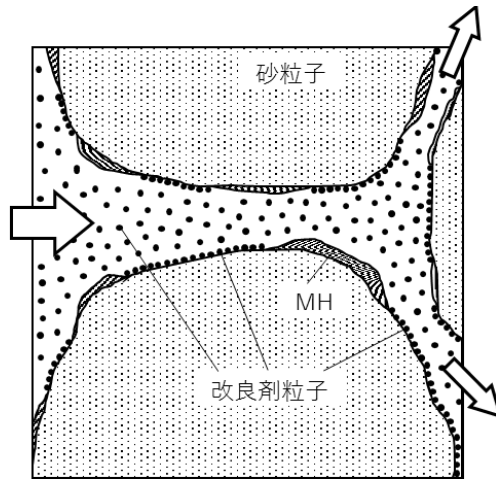
(3) 地盤改良剤を MH 層に注入する前に、予め、対象 MH 層を加熱すること（以下：予備加熱法と記す）（図 7-7）。加熱方法としては、温水圧入、温水循環のほか、電気加熱や地中バーナー等からも適宜選ばれる。加熱により MH を一部分解させ、MH 層の浸透率を改善することができる。この方法は、地層にインヒビター物質を投入せずに MH の飽和率を下げるのが可能であり、環境基準が厳しい国や地域での実施に有利である。また、インヒビター物質による地層水や粘土鉱物との反応や、改良剤との相性といった課題もなく、計画、実施、評価が比較的簡単である。



(a)



(b)



(c)

図 7-6 インヒビター先行注入法のイメージ
 (a) 浸透率改善前, (b) 浸透率改善後
 (c) 浸透率改善後に改良剤を注入

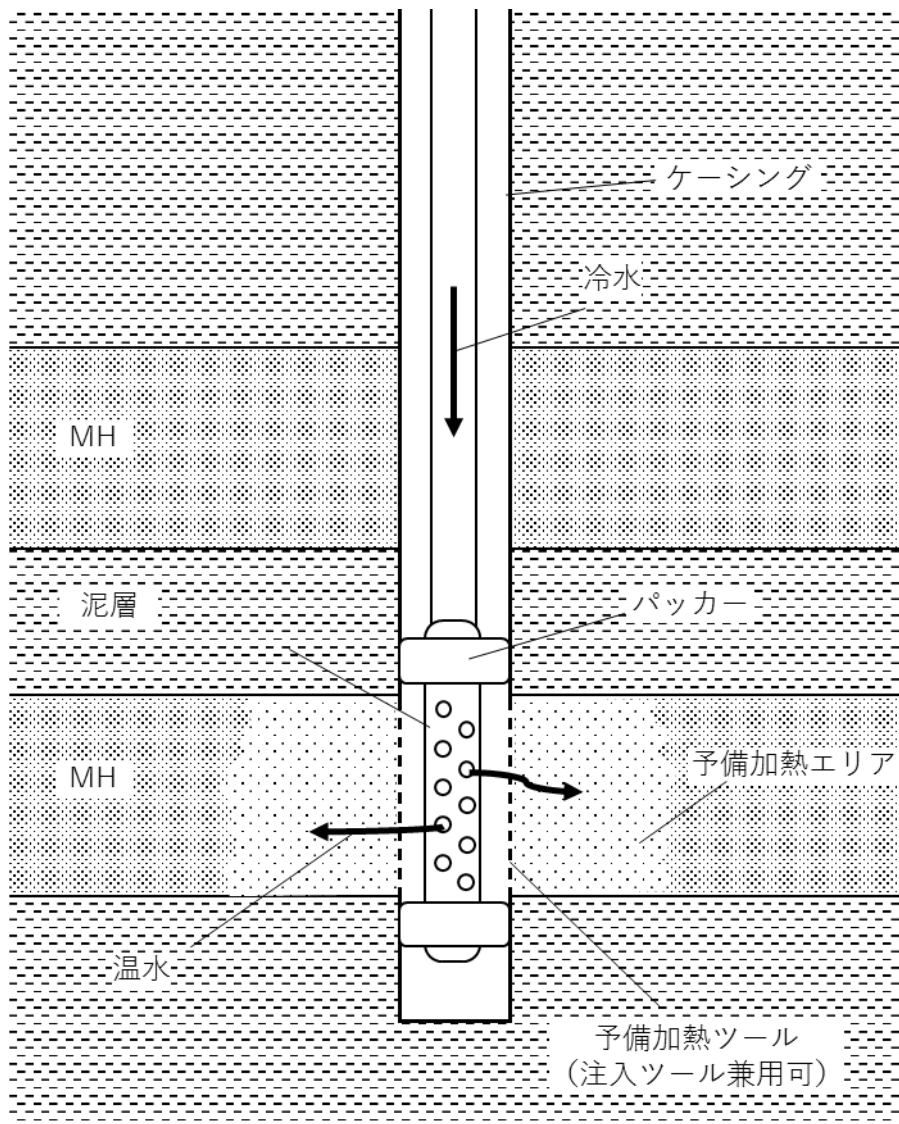


図 7-7 坑内ヒーターによる予備加熱法のイメージ

上記(1)～(3)のいずれかの方法で MH の初期飽和率を低下させることで、MH 層の浸透率の改善、改良剤の注入性の向上、改良剤と砂粒子との有効接触面積の拡大を実現可能と考えている。また、これらの手法は、高飽和率の MH 層だけでなく、低・中飽和率の MH 層に対しても、安定化改良の効果の向上手法として実施可能と考えられる。

前記手法の実現性を検証するために、インヒビターの投入により供試体のハイドレート飽和率を低下させ、改良剤の注入効果を向上

させる実験を行った。実験では、 $S_{TH}=60\%$ の供試体にインヒビターを注入し、そのレートの変化を記録した。インヒビターには、1) TH に分解促進効果を有すること、2) 改良剤の効果に著しい影響を与えないこと、3) 実験装置への浸食性や毒性がないことを基準に、純水（蒸留水）を選定した。その理由は、TBAB 溶液を冷却させ TH を作製する際に、供試体の孔隙に TH と TBAB の平衡溶液が存在するが、この平衡溶液を純水で置き換え、または希釈して濃度を低下させれば、既存の TH を分解させることができるためである。また、インヒビターの濃度や改良剤の共存による影響を確認するためには、純水のほか、異なる濃度を有する TBAB 溶液や改良剤も同一の条件で注入し、そのレートから供試体の浸透性の変化を推定・比較した（表 7-3）。

表 7-3 インヒビターによる薬剤注入効果の向上のための実験パラメータ

| 項目 | パラメータ |
|-------------|--|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂 7号, TBAB 溶液 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | TH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 60% |
| インヒビター | 先行注入： <ul style="list-style-type: none"> ・純水（蒸留水） ・2.5w%TBAB 溶液 ・TBAB 平衡溶液をベースにした 30,000ppmNaCl 溶液 |
| | 参照実験： <ul style="list-style-type: none"> ・5.0w%TBAB 溶液 (TBAB 平衡溶液) |
| | 同時注入： <ul style="list-style-type: none"> ・純水配合の改良剤 ・平衡溶液配合の改良剤 |
| 改良剤主剤濃度 | 20w% |
| 配合剤濃度 | 0.3w% |
| 注入圧力 | 上流圧：1atm+15kPa 下流圧：大気開放（1atm） 差 圧：15kPa |
| 実験温度 | 3℃ |

図 7-8 に、各注入液の注入レートを示す。平衡溶液(5.0w%TBAB)を注入した場合は、注入レートは微増したものの、概ね安定したレートを示した。この微増は、流体が供試体を通過する際に生じた流動抵抗による温度上昇が原因と考えられる。一方、純水と2.5w%TBAB 溶液を注入した場合は、注入開始後からまもなくして注入レートの急上昇が観測され、供試体の浸透率が大幅に改善されたことを示している。また、平衡濃度(5.0w%)との差が小さい2.5w%TBAB 溶液の場合には、注入レートは、純水と比べて上昇ペースが若干遅れたものの、最終的には純水と同じく 38.5mL/min まで達した。すなわち、平衡濃度より低濃度の TBAB 溶液は、TH の分解促進に有効であることが明らかになった。しかし、MH をはじめとするガスハイドレートに分解促進効果を有すると思われる NaCl 溶液をインヒビターとして注入した場合は、注入開始直後に一時的にレートが上昇したが、2分後に低下に転じ、15分後に 0.02mL/min とほぼ注入不可になった。これは、対象ハイドレートの種類や性質を踏まえてインヒビターを選定する重要性を示唆している。

さらに、前記提案のうち(1)同時注入法の有効性を検証するために、純水と 5.0w%TBAB 平衡溶液を用いてそれぞれ改良剤を配合し、供試体に注入した。その結果、平衡溶液による改良剤では注入レートがほぼ一定であったのに対し、純水による改良剤の場合は注入レートが著しく上昇した(図 7-8)。また、その上昇ペースは純水のみを注入した場合と比べ緩やかであったが、これは主に注入液の粘度の違いによるものと考えられる。

以上の検討から、対象ハイドレート層に分解促進効果を有するインヒビターを注入することで、ハイドレートの飽和率を低下させ、改良剤の注入効果を向上させることが十分期待できることを確認した。ただ、これらの検討は、模擬ハイドレート TH とそのインヒビター(純水)によるものであり、実際の MH 層を対象とする場合は異なるインヒビターを検討する必要があることに留意されたい。

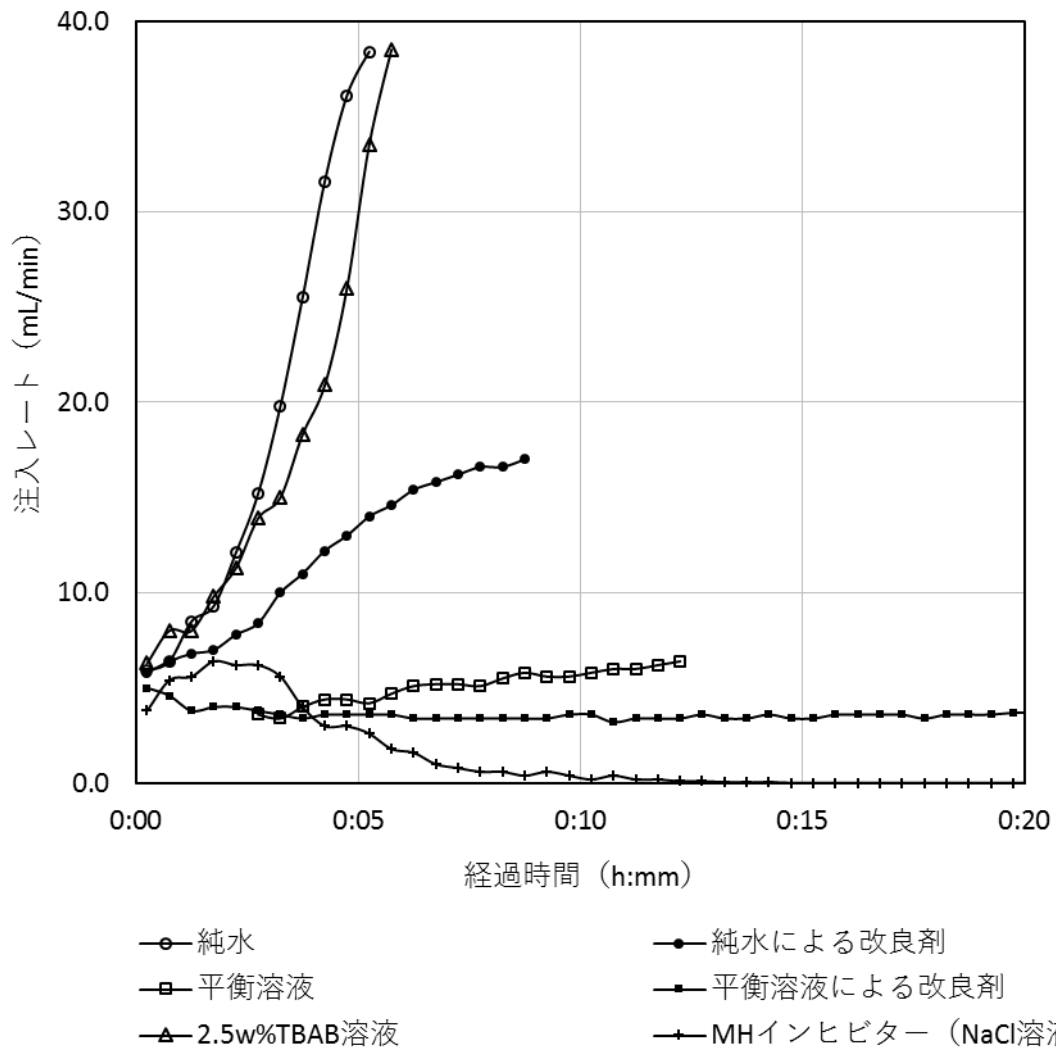


図 7-8 異なる注入液（インヒビター）による注入レートの推移

7.1.4 分解ガス発生時における適用性

前記の実験では、高い飽和率で作製できる TH 供試体を用いて、ハイドレート層における本手法の適用性や薬剤の注入効果の向上方法の有効性を確認できた。しかし、実際の MH 層では、インヒビターによる前処理において大量の分解ガスの発生が予想されるが、TH は分解後に TBAB 溶液になり、このような分解ガスの挙動を再現できない。一方、孔隙中の分解ガスは、孔隙流体の組成と性質を大きく変えるほか、薬剤の注入を妨害することや、一旦注入した薬剤を押し戻す（坑内へと排出する）ことが予想されるため、本手法の適用性を検討する際に避けられない課題である。

そのため、本節では、MH と同様に分解ガスを発生できる i-BH を用いて供試体を作製し、改良剤を注入してみた。i-BH 供試体は、初期飽和率を氷置換法により作製できる上限の 40%とし、塩分濃度を 0ppm とした。また、注入時の上流圧、下流圧を実験温度(0℃)における安定領域内に制御しながら、20kPa の差圧を作成した。その際、分解ガスの発生具合や薬剤の注入（液体の回収）レートと累積量を記録し、分解ガスが発生する条件における注入性を評価した。さらに、注入後の i-BH 供試体を TH 供試体と同じ日数で養生し、その固結可否や固結後の物性を評価した。その実験のパラメータを表 7-4 に示す。

表 7-4 インヒビターによる薬剤注入効果の向上のための
実験パラメータ

| 項目 | パラメータ |
|-------------|--|
| 使用装置 | 4号機 B, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂 7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | i-BH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 40% |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 30w% |
| 配合剤濃度 | 0.45w% |
| 促進剤濃度 | 60g/L |
| 実験温度 | 0°C |
| 注入圧力 | 上流圧：150 下流圧：130 差 圧：20 |
| 注入停止基準 | 液体回収量が 100mL に達する時, または注入開始から 90min 経過後 |
| 養生期間 | 7日間 |

図 7-9 に, i-BH 供試体に改良剤を注入した際のガス・液体の回収レートと累積量を示す. 注入開始から 30min 以内は, 分解ガスの発生が確認されたが, 改良剤 (液体) の透過が見られなかった. これは, 分解ガスの発生により孔隙圧が上昇し, 薬剤注入のための圧力勾配を抑えたことと, 分解ガスによる気泡の毛細管圧力が薬剤の注入抵抗に加わったことで, 改良剤の注入が困難になったためと考えられる. また, 注入開始から 30min 後には, 改良体の下流側に液体の到達が確認され, 次第にガス・液体とも回収レートの上昇が観測された. そして, 注入開始から 90min 後には, 改良剤粒子の凝集により実験結果に影響を与える可能性を考慮し, 注入を停止した. その際の i-BH 残量は初期値の約 50% (残存飽和率 \approx 20%) になり, 改良剤の注入レートが僅か 1.8mL/min 程度であった. これは, TH の場合と比べ注入レートが著しく低く, i-BH の表面で発生した分解ガスが i-BH と薬剤との接触を妨害し, その注入レートの上昇を抑制したためと考えられる. さらに, 注入終了後にも, 大量のガスの発生や改良剤の流出が確認された. これは, 孔隙に注入

した改良剤にも i-BH にある程度の分解促進効果を有し，その影響で残存した i-BH が継続して分解し，発生したガスが改良剤を孔隙の外へと排出したためと考えられる．すなわち，分解ガスは，薬剤の注入を妨害する作用だけでなく，一旦注入した薬剤を排出する懸念もあることが分かった．

一方，上記の供試体を 7 日間養生した後に物性を測定した結果，i-BH 分解後の有効浸透率 = 826mD，一軸圧縮強度 = 2.33MPa と，7.1.1 および 7.1.2 の TH を用いた実験と比べ遙かに高い強度を実現した．もちろん，これは低温時の強度発現を向上させる促進剤を使用した結果ではあるが，そもそも改良剤粒子が全部排出した場合は固結できないため，分解ガスによる薬剤の排出作用を受けた場合にも相当数の改良剤が孔隙に残ったことが示唆された．これは，1) 注入終了後のガス発生レートが低く，孔隙内におけるガス相の流動が極めて緩やかであるため，相対浸透率の関係から水相への排出作用が限定的であること，2) 分解ガスによる薬剤の排出は数時間～十数時間にわたる比較的緩慢な挙動であるのに対し，改良剤粒子の凝集や（促進剤により加速させた）水和反応は先に進むため，ある程度孔隙に付着しセメント水和物へと成長し始めた改良剤粒子は排出しにくくなること，3) 改良剤の中の一部の水は排出されたものの，i-BH の分解で発生した水が改良剤の水和反応に供したため，その固結効果に大きな落ち込みが見られなかったこと，が原因と考えられる．すなわち，分解ガスによる薬剤の排出作用は，孔隙に注入した薬剤を全部排出することが困難であることから，分解ガスによる影響を受けた場合においても，砂粒子を有効に固結し，浸透性と強度を両立した供試体を作製することが十分可能であることが明らかになった．ただ，実際のフィールドでは，坑井の近傍における流速が高く，薬剤への排出作用が比較的高いため，その影響を慎重に検討する必要があると考えられる．

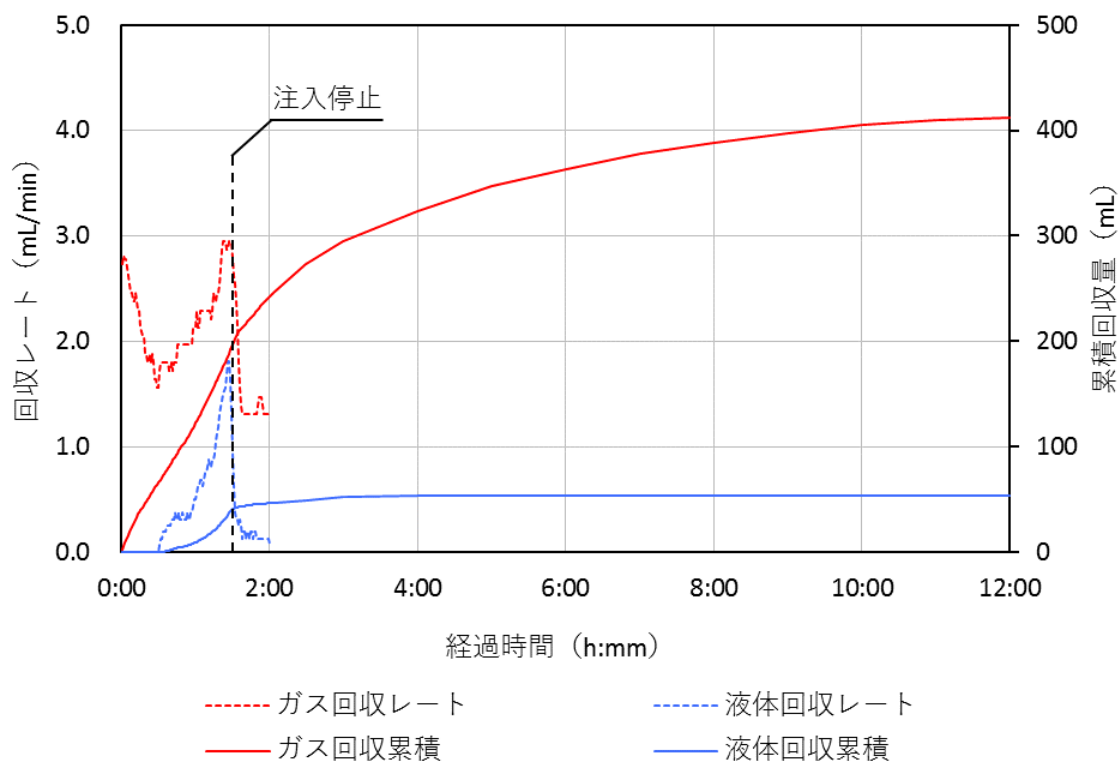


図 7-9 i-BH 供試体に改良剤を注入した際のガス・液体の回収レートと累積量
(いずれも常温常圧での換算値，以下同様)

以上の検討から，本手法は，孔隙に大量のハイドレートが充填し，かつハイドレートが分解する際に大量のガスが発生する条件においても，第 4 章に示す 4 つの課題，すなわち a) 薬剤の注入性，b) 薬剤の固結性，c) 改良体の浸透性，d) 改良体の強度の面において，十分有望であることが明らかになった。

7.2 本手法の効果への影響要素の検討

前節では、本手法が実際のハイドレート層の安定化に十分適用可能であることを検証した。一方、実際の応用においては、所要の性能を有する改良体を形成するのに、フィールドごとの条件に合わせ、操業方法やその条件について事前計画、検討および最適化を行う必要がある。そのためには、本手法による改良体の物性に影響を与え得る要素を検討しなければならない。

表 7-5 に、実際の現場操業において考えられる影響要素の一覧を示す。フィールド条件のうち、砂の粒径分布や MH の飽和率は地層の浸透率を大きく左右しており、改良剤の注入効果に大きな影響を与えると考えられる。また、粘土鉱物と地層水に含まれる鉱物イオンは、改良剤との化学的作用により MH 層の浸透率を低下させたり、改良剤の固化効果に影響を与えたりする可能性があるため、それを踏まえて改良剤の種類と配合比を検討する必要がある。さらに、地層温度は改良剤の反応性を左右する可能性があり、注入効果や固化効果に影響を与える可能性が考えられる。一方、操業条件のうち、インヒビターの濃度は MH 層の浸透性の改善効果を左右し、改良剤の注入効果に大きな影響を与える可能性がある。また、改良剤（主剤、配合剤、添加剤）の種類、配合比および配合温度は、改良体の物性を大きく左右する重要なパラメータである。そして、薬剤の注入方式（浸透率改善方式、注入開始および停止タイミング）により、改良剤の注入効果や分解ガスによる薬剤の排出効果が大きく異なり、改良体の物性に影響を与え得る。さらには、一般的に養生時間が長いほど改良剤の固化が進み、低浸透および高強度になる傾向であるが、作業日数に伴うコストの増加や低浸透率による生産性の低下等との兼ね合いから、最適な養生日数を決めておく必要がある。なお、本研究では、影響要素に関する評価指標として、注入・養生時のガス・液体の回収レートのほか、養生後の供試体の有効浸透率、乾燥密度および一軸圧縮強度を採用した。ただ、長期間にわたる安定生産を目指すには、流体生産条件における改良体の耐久性も要求されるが、本研究では時間の制約上割愛する。

表 7-5 改良体の物性への影響要素一覧

(※印は今回の評価対象外)

| フィールド条件 | 作業条件 | 評価指標 |
|--|--|--|
| 砂の粒径分布 初期 MH 飽和率 初期塩分濃度 粘土鉱物* 地層温度 その他* | インヒビターの濃度 改良剤，添加剤の濃度 改良剤の配合温度 MH 層の浸透率改善方式 インヒビター及び改良剤 の注入停止タイミング 養生期間 | 注入・産出レート 有効浸透率 有効浸透率 乾燥密度 一軸圧縮強度 耐久性* |

7.2.1 砂層の粒径分布

砂層の粒径分布に対する改良剤注入・養生後の改良体の物性変化の評価では，東北硅砂 7号（中心粒径 $d_{50}=128.8\mu\text{m}$ ）および東北硅砂 8号（中心粒径 $d_{50}=82.5\mu\text{m}$ ）を用い，異なる粒径分布を有する砂材料を，A～Eの5パターンに対して各4つ用意した（表7-6）．その粒径分布を図7-10に示す．これらの砂材料を用い，水中落下法により供試体を作製した．供試体については，中心粒径が大きくなるにつれ，初期絶対浸透率が高くなる傾向を確認した．各供試体には，表7-7に示す条件により改良剤を注入し，養生後の物性を測定した．測定した改良前後の絶対／有効浸透率を図7-11に，一軸圧縮強度の分布を図7-12に示す．

表 7-6 各パターンの供試体の作製パラメータ

| 砂層 材料 | 配合比（w%） | | 中心粒径 （ μm ） | 孔隙率 （%） |
|----------|---------|------|---------------------------|------------|
| | 7号硅砂 | 8号硅砂 | | |
| A | 0 | 100 | 82.5 | 41* |
| B | 25 | 75 | 90.7 | 39* |
| C | 50 | 50 | 101.7 | 38 |
| D | 75 | 25 | 117.0 | 38 |
| E | 100 | 0 | 128.8 | 38 |

※：粒径が細くなるにつれて振動法による
孔隙率の調整が困難になる．

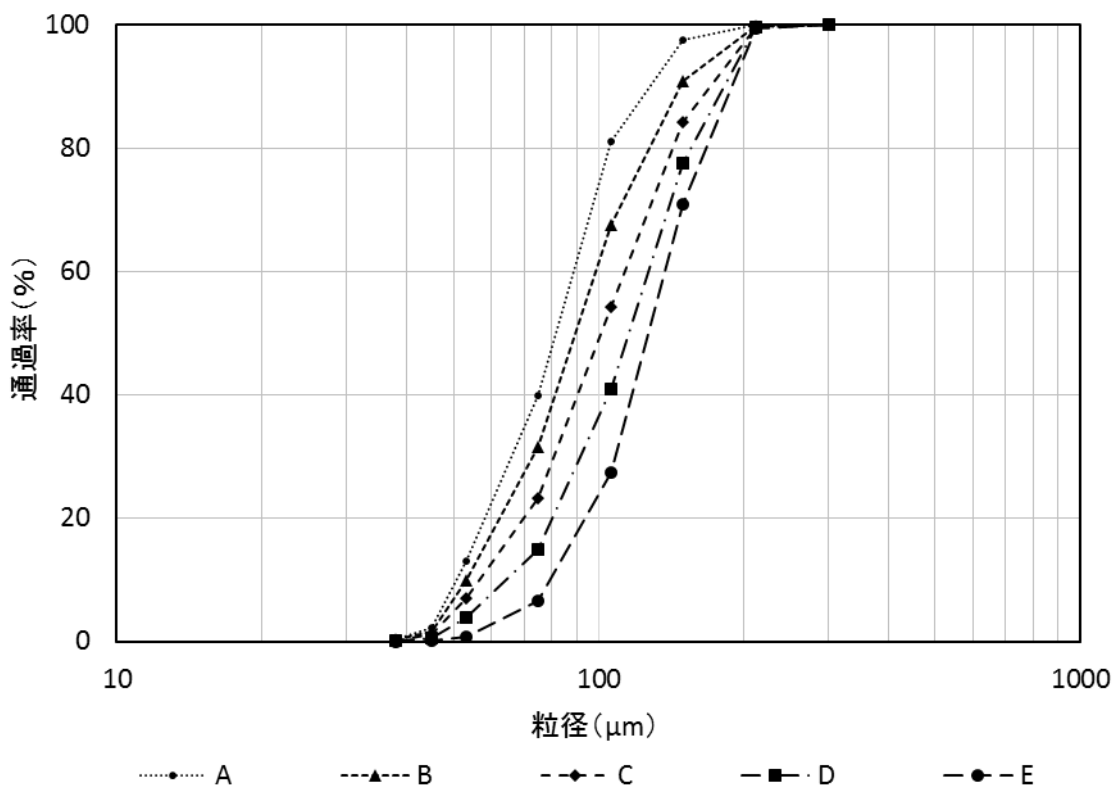


図 7-10 実験に用いた砂層材料の粒径分布

表 7-7 砂層の粒径分布による影響を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|----------|--|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 表 7-6 に示す東北硅砂 7号, 8号およびその混合物, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38%, 39%*, 41%* |
| 模擬ハイドレート | なし |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| 改良剤主剤濃度 | 20w% |
| 配合剤濃度 | 0.3w% |
| 促進剤濃度 | 30g/L |
| 注入圧力 | 上流圧: 1atm+15kPa 下流圧: 大気開放 (1atm) |
| 養生温度 | 23℃ |
| 養生期間 | 7日間 |
| 測定パラメータ | 固結前の絶対浸透率 固結後の有効浸透率 一軸圧縮強度 (UCS) |

※: 粒径が細く, これ以上に調整困難な供試体のみ

実験の結果，中心粒径 $d_{50}=82.5\sim 128.8\ \mu\text{m}$ の場合，有効浸透率 $=19.5\sim 731.7\text{mD}$ ，一軸圧縮強度 $=3.37\sim 9.48\text{MPa}$ の供試体を作製することができた．また，供試体の中心粒径が小さいほど浸透率が低くなる一方で，一軸圧縮強度が高くなる傾向が見られた．このうち，砂材料 E ($d_{50}=128.8\ \mu\text{m}$) による供試体では改良後の浸透率は初期値の 12% (8.52 分の 1) まで低下したのに対し，砂材料 A ($d_{50}=82.5\ \mu\text{m}$) の場合は，改良後の浸透率が初期値の約 1% (97.62 分の 1) まで激減した．一方，砂材料 E と比べ，砂材料 A による固結後の供試体の方が約 2.5～3 倍の強度を実現した．これは，平均粒径が小さくなるにつれ，(1) 砂粒子の表面積が増え，改良剤との有効接触面積が大きくなる，(2) 一定体積に対する砂粒子同士の接触ポイント，すなわち固着ポイントが増える，(3) 孔隙サイズが小さくなり，近隣の砂粒子同士に付着して成長するセメント水和物が孔隙を跨いで繋ぐ確率が高くなる，ためと考えられる．なお，粒子状改良剤を用いる場合に限り，改良剤の粒径により対応できる砂層粒径には下限があると考えられるが，本実験では少なくとも $d_{50}\geq 82.5\ \mu\text{m}$ の砂層であれば対応可能であることを明らかにした．以上のことから，砂層の粒径により改良体の物性が大きく異なるため，作業前に対象 MH 層の粒径分布を十分に把握，検討する必要があると考えられる．

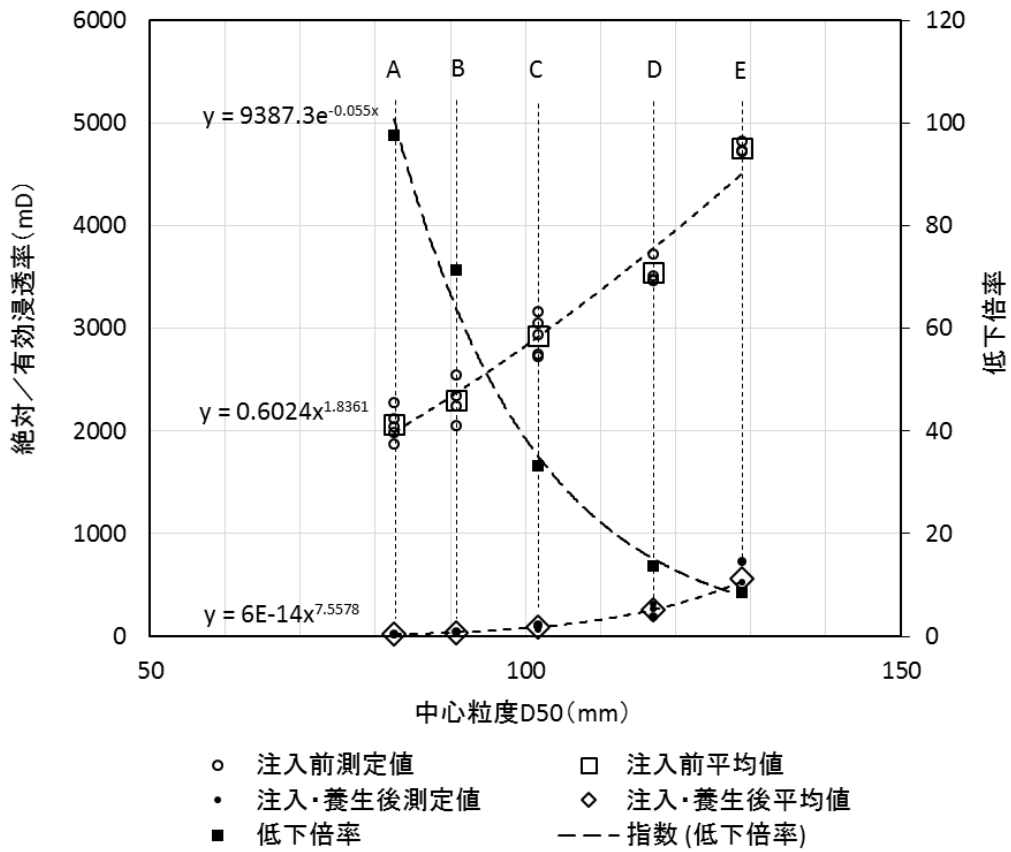


図 7-11 中心粒径に対する改良前後の絶対（有効）浸透率の変化

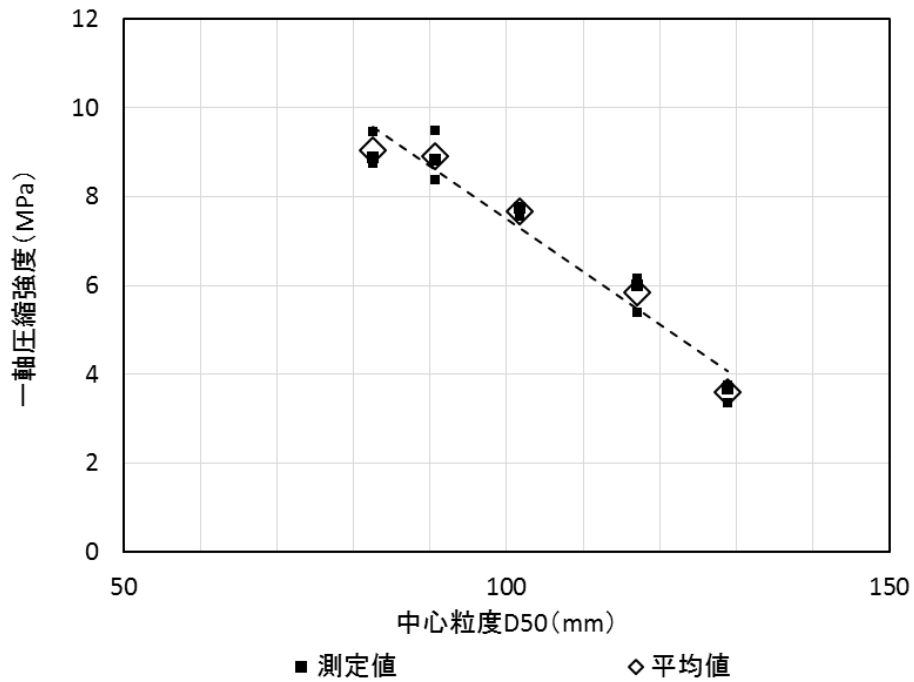


図 7-12 中心粒径に対する改良後の一軸圧縮強度分布

7.2.2 初期 MH 飽和率

初期 MH 飽和率は、改良剤の注入性に大きな影響を与えることが 7.1.1 の実験により既に確認されている。また、インヒビター等により MH 層の飽和率を低下させた場合にも、貯留層に一部の MH が残存することが想定される。この場合、残存する MH の飽和率により改良剤の注入性が低下するほか、その分解ガスにより改良剤の注入障害や注入後の排出も予想される。そのため、本実験では、MH と同様に分解ガスを発生できる i-BH を用いて初期飽和率 S_{iBH} 、 $= 0\% \sim 40\%$ の供試体 21 本を作製し、初期または改良剤へと切り替える時の MH (ガスハイドレート) 飽和率による改良剤の注入性や改良体の物性への影響を検証した。その実験条件を表 7-8 に示す。ただし、 $S_{i-BH} = 20\%$ のケースでは、注入弁の不具合により改良剤を遮断できなかつたため、元栓を閉める (90min) まで注入を継続した。また、本章におけるすべてのレートは 1min 間隔で計測したものである。

表 7-8 初期 MH (ガスハイドレート) 飽和率による影響
を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|---------------|--|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | i-BH |
| 初期 i-BH 飽和率 | 0, 10, 20, 30, 40 (%) |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 30w% |
| 配合剤濃度 | 0.45% |
| 促進剤濃度 | 60g/L |
| 注入温度 | 0°C |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧: 150 下流圧: 130 差 圧: 20 |
| 注入停止基準 | 回収液体が 100mL に達した時, 分解ガスが発生しなくなる時, または注入時間が 90min に達した時 |
| 養生期間 | 7日間 |
| 測定パラメータ | 固結後・i-BH 分解後の有効浸透率 乾燥密度, 一軸圧縮強度 (UCS) |

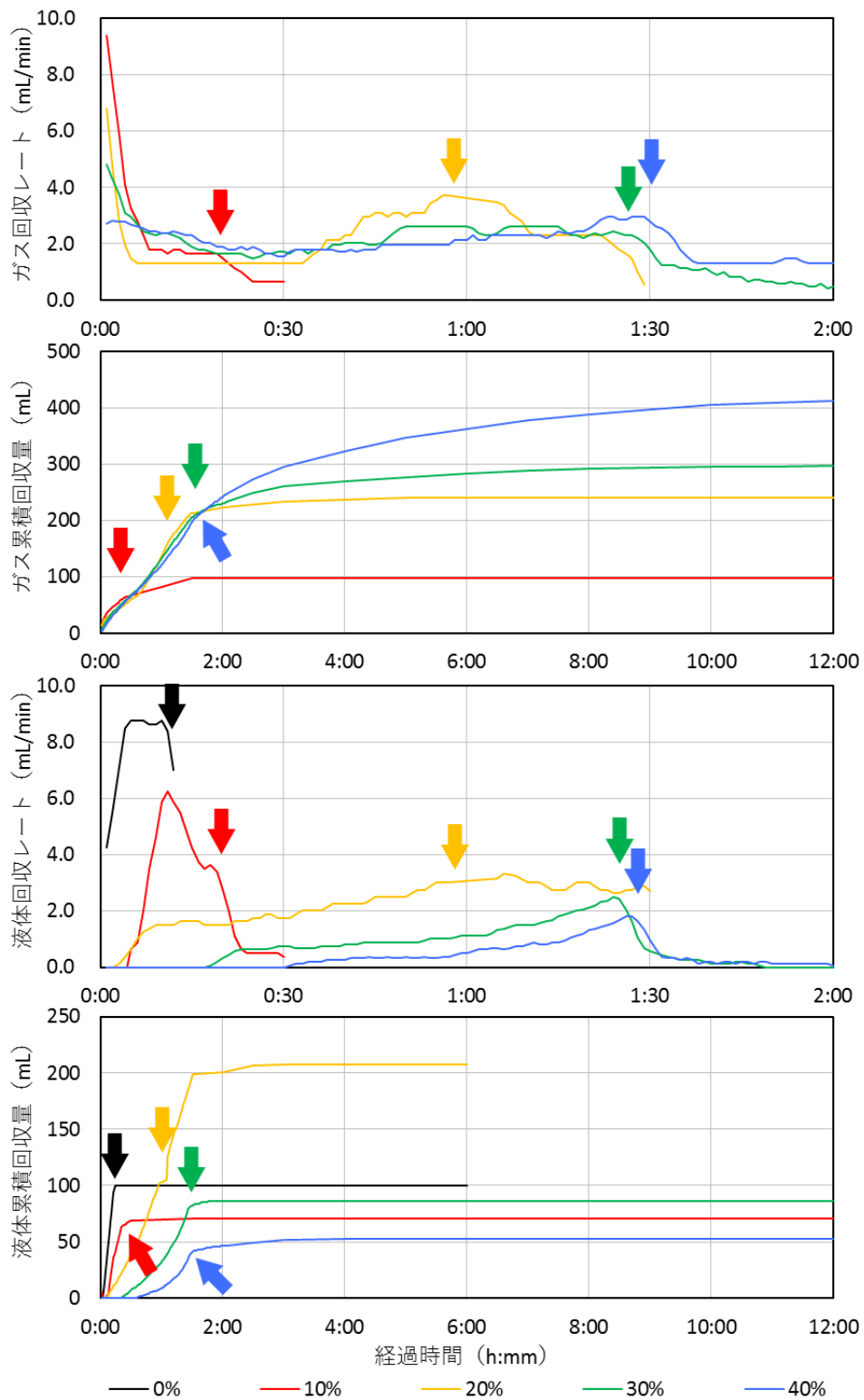


図 7-13 異なる初期 i-BH 飽和率によるガス・液体の回収レートと累積量
(矢印は各注入停止時刻)

図 7-13 に、 $S_{iBH_i} = 0\% \sim 40\%$ の i-BH 供試体に改良剤を注入した際の回収ガス・液体の挙動を示す。 $S_{iBH_i} = 0\%$ のケースを除き、いずれも改良剤の注入に伴い分解ガスが回収されたことから、本研究で使用した改良剤も i-BH に分解促進効果を有することが分かった。また、 $S_{iBH_i} \leq 10\%$ のケースでは、注入開始直後から液体の回収レートが高く、分解ガスによる注入障害を確認できなかったが、 $S_{iBH_i} \geq 20\%$ の場合は液体回収レートが著しく抑制され、i-BH 飽和率が約 10%~15%まで低下した後に初めて大きな上昇を確認できた。この挙動は、7.1.4 の実験結果と同じく、1) i-BH の表面でガス相が形成し、注入薬剤との接触を妨げたこと、2) 分解ガスの発生により注入フロントにおける圧力が上昇し、薬剤注入のための圧力勾配を抑えたこと、および 3) 分解ガスによる気泡の毛細管圧力が薬剤の注入抵抗に加わったことが原因と考えられる。すなわち、東北硅砂 7号による TH 供試体では $S_{TH} = 60\%$ までが改良剤を容易に注入できる基準であるが、分解ガスの影響を受ける i-BH の場合はその境目が $S_{i-BH} = 10\% \sim 15\%$ 程度に止まることが分かった。さらに、7.1.4 の実験結果と同様に、 $S_{i-BH} = 0\%$ のケースを除き、改良剤の注入停止後にも分解ガスの発生や改良剤の排出が確認されたが、その回収量からは、初期 i-BH 飽和率による薬剤の排出作用に大きな差が見られなかった。これは、いずれの供試体においても注入停止時の i-BH の残量が少なく、その後のガス発生レートすなわち薬剤排出作用が弱かったためである。ただ、この現象が実際の MH 層で発生した場合は、坑井付近の流速が高いため、一旦注入した改良剤が坑内へと排出され、坑井周辺の安定化効果が弱まる可能性があることを否定できない。

また、図 7-14 と 7-15 には、これらの供試体を 7 日間養生した後の物性を示す。物性計測では、1) 固結後の供試体の浸透率を測定するための成形を行う際に i-BH の分解が避けられないことと、2) ガスの累積回収量から、養生・固結後には i-BH がほとんど残らずに分解したと判断したことから、改良剤固結後・i-BH 分解前の有効浸透率を測定せず、改良剤固結後・i-BH 分解後に供試体内の水を全て空気で排出した後の有効浸透率のみを、流体生産性

の評価指標として用いた。物性の分布では、 $S_{iBH} \leq 15\%$ では初期 i-BH 飽和率が高いほど一軸圧縮強度と乾燥密度が低下する一方、 $15\% \leq S_{iBH} \leq 40\%$ の場合には著しい差異が見られなかった。これは、高 i-BH 飽和率の場合は初期段階での注入が難しく、i-BH 飽和率が約 10%～15%まで低下した後に初めて大量注入が可能になるため、 $S_{iBH} \geq 15\%$ の供試体でも実質的な注入開始時の i-BH 飽和率が 10%～15%前後に揃ったためである。また、 $S_{iBH} = 0\%$ （水層）の供試体では一軸圧縮強度が 3.3～4.2MPa であったのに対し、 $S_{iBH} \geq 15\%$ の場合は約 2.0～2.6MPa とおおよそ 2/3 程度の強度を実現したことが明らかになった。さらに、固結後の供試体の有効浸透率は 291mD～1015mD に分布しており、流体の生産には十分な浸透性を有すると思われる。以上のことから、分解ガスが発生する i-BH（ガスハイドレート）層では、 $S_{iBH} = 15\%$ 前後が薬剤の注入性、分解ガスによる薬剤排出作用、および改良体の物性分布等の境目であると考えられる。なお、実際の開発対象とされる MH 層では、初期 MH 飽和率が 15%を遙かに超えるため、薬剤の注入性（MH 飽和率が 10%～15%前後に低下し本格的に注入開始するまでの所要時間）以外は、最終的な安定化効果（改良体の物性）に大きな影響がないと考えられる。

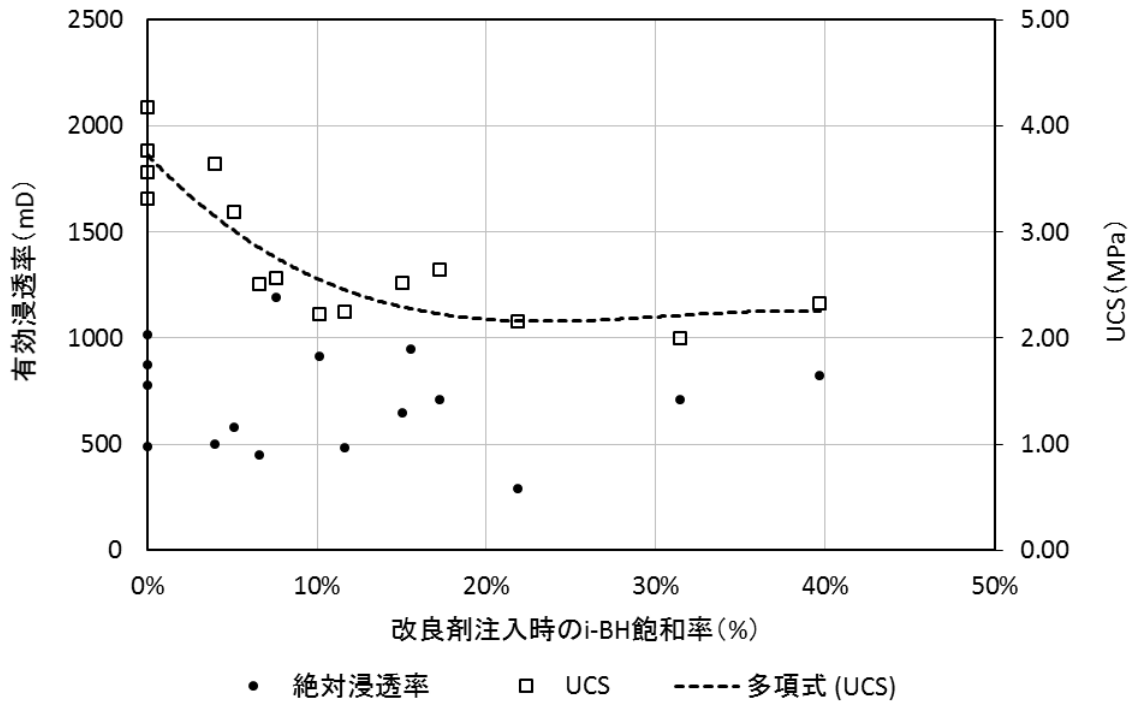


図 7-14 改良剤注入時の初期 i-BH 飽和率に対する供試体の有効浸透率と一軸圧縮強度

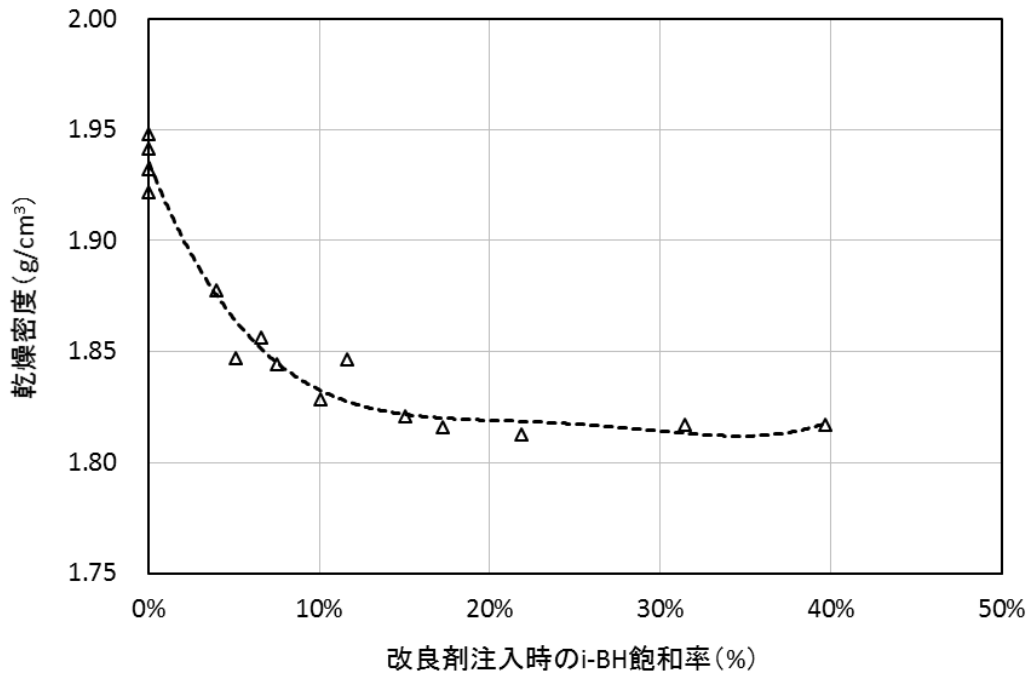


図 7-15 改良剤注入時の初期 i-BH 飽和率に対する供試体の乾燥密度

一方, 固結後の供試体は流体生産のために十分な浸透性を有するものの, その分布のバラツキが大きく, 初期飽和率に対し明確な変化傾向を確認できなかった. また, 供試体の乾燥密度に対し一軸圧縮強度がおおむね線形関係を示しているのに対し, 浸透率測定値の分布は極めて広く, 明確な傾向を確認できなかった (図 7-16). これは, 分解ガスによる注入障害は高 i-BH 飽和率・低浸透率の箇所には作用しやすいため, 薬剤の浸透経路, すなわち i-BH の分解・改良箇所が低 i-BH 飽和率・高浸透率の局部に集中し, 水層または TH 供試体の場合と比べてワームホール状の不均質を形成させやすいためである. (図 7-17). 実際, 本節の実験で注入した 21 本の供試体の中では, 目視または成形時の触感で著しい不均質が判明したものが 5 本 (約 1/4) あり, そのうち 4 本が $S_{iBH_i} \geq 15\%$ の比較的高い飽和率の供試体であったことから, 初期 i-BH (ガスハイドレート / MH) 飽和率が高い程, 分解ガスによる局所的な注入障害が改良体の不均質を起ししやすい傾向があることが明らかになった.

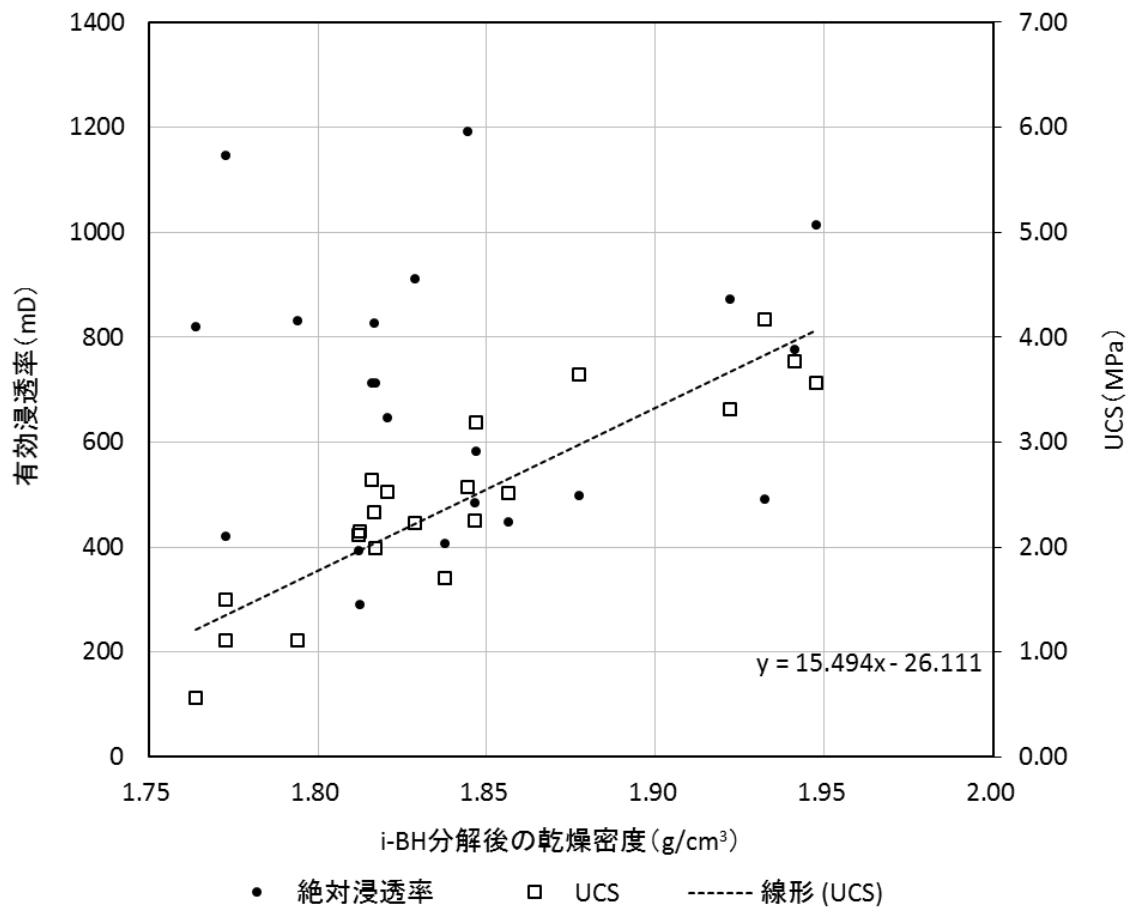


図 7-16 固結後の供試体の乾燥密度に対する
 有効浸透率と一軸圧縮強度の分布
 (一部不均質供試体の局所切断試料を含む)

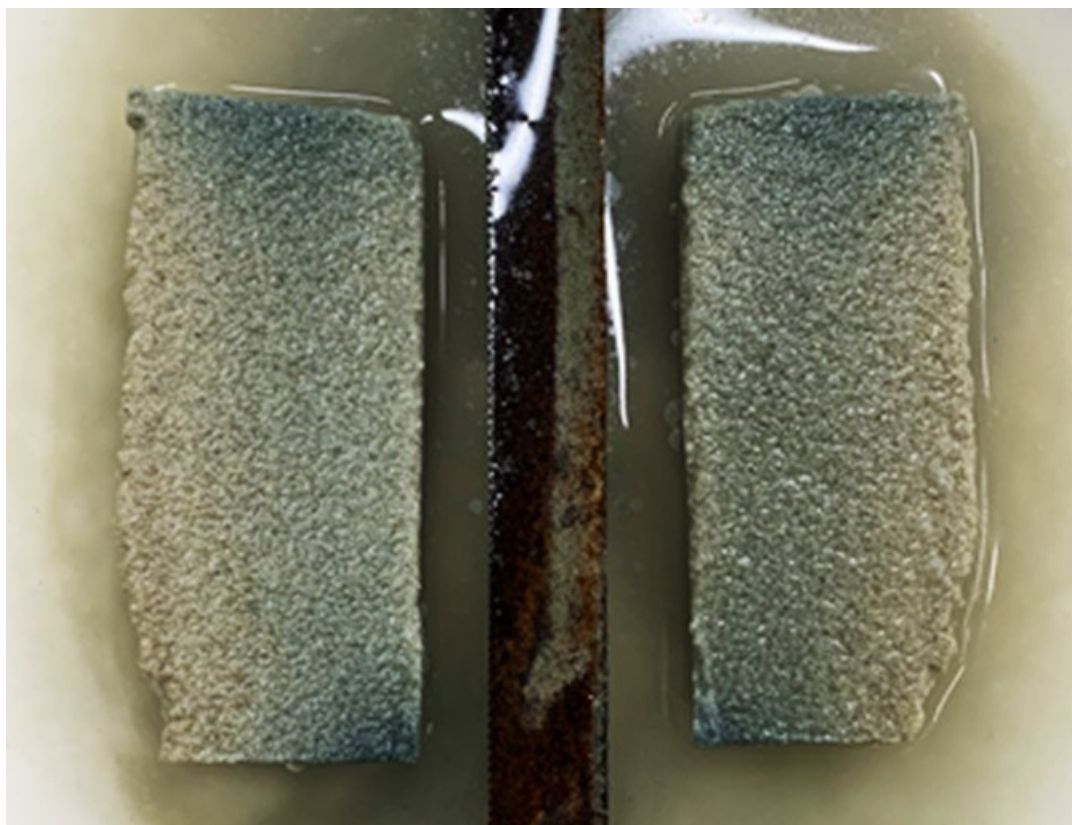


図 7-17 不均質があった供試体の縦断面
改良剤の浸透経路が中心部に集中しており、
外周部を十分に固化できなかつたことが分かる

7.2.3 地層水の初期塩分濃度

南海トラフ MH 層の地層水の初期塩分は、西尾ほか（2009）により概ね 40,000ppm であり、そのうち 85%～88%が Na⁺と Cl⁻であることが分かった。また、掘削時の泥水循環や MH 分解時に発生した水等により、これより低濃度になることも想定される。そのため、本研究における地層水の初期塩分濃度による改良体物性への影響を評価する実験では、模擬地層水に塩分濃度 = 0ppm（純水）～40,000ppm の食塩（海塩）溶液を採用し、供試体を作製した。なお、食塩（海塩）は、模擬ハイドレートの生成に影響があるため、本実験では MH を含まない、または MH が完全に分解した水層を想定し行った。その実験パラメータを表 7-9 に示す。

表 7-9 地層水の初期塩分濃度による影響を検証するための
実験条件

| 項目 | パラメータ |
|----------|---|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北珪砂 7号, 海塩溶液 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | なし |
| 初期塩分濃度 | 0～40,000ppm |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 20w% |
| 配合剤濃度 | 0.3w% |
| 促進剤濃度 | 30g/L |
| 注入温度 | 23℃ |
| 注入圧力 | 上流圧：1atm+15kPa 下流圧：大気開放（1atm） 差 圧：15kPa |
| 注入停止基準 | 回収液体が 100mL に達した時 |
| 養生期間 | 7日間 |
| 測定パラメータ | 固結後の有効浸透率 一軸圧縮強度（UCS） |

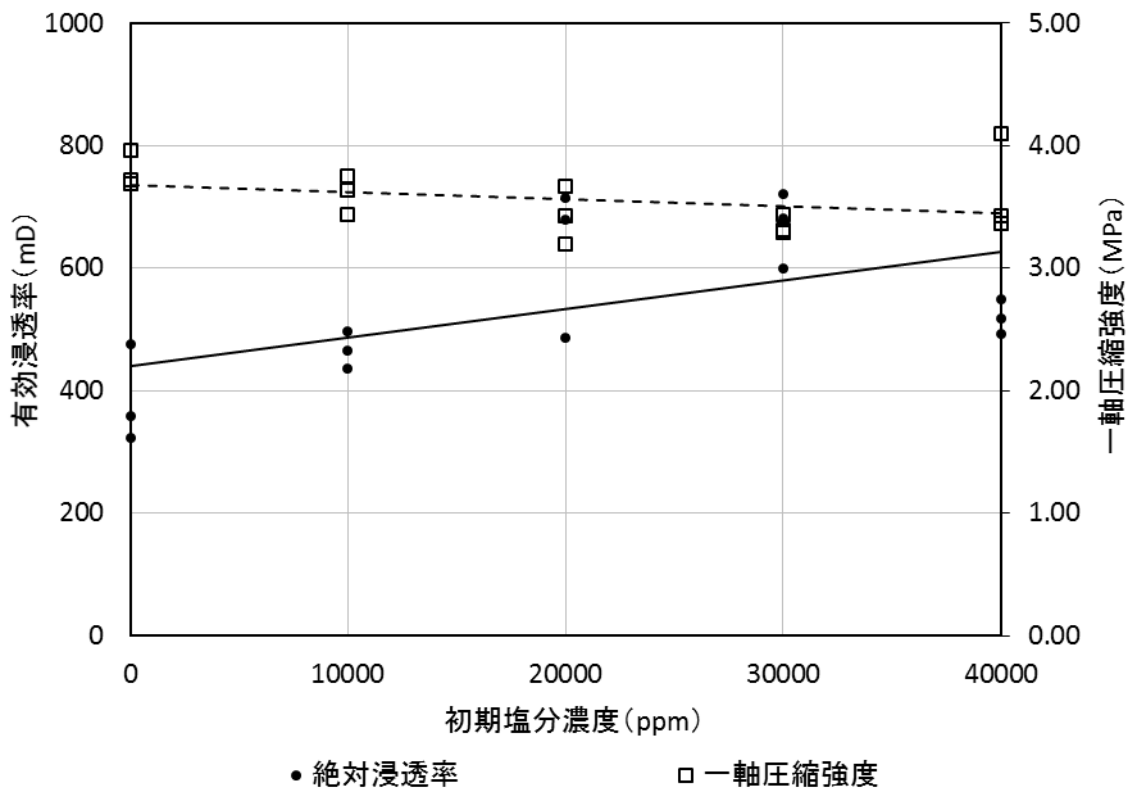


図 7-18 初期塩分濃度に対する固結後の供試体の物性分布

図 7-18 には、測定した供試体の物性分布を示す。供試体の初期塩分濃度 = 0~40,000ppm の範囲では、改良剤の注入・養生後に、有効浸透率 = 322.6~721.7mD、一軸圧縮強度 = 3.19~4.10MPa の物性値が得られた。初期塩分濃度の増加につれ、供試体の有効浸透率がやや増加したのに対し、一軸圧縮強度がやや低下する傾向を確認した。また、初期塩分濃度 = 20,000~30,000ppm 前後には、供試体の浸透率がピークに達し、一軸圧縮強度が微弱なものの低値を示す傾向を確認した。なお、塩素イオンはセメントの早期強度発現を促進する効果を有するが、本実験においてはそのような傾向が見られなかった。これは、注入前に存在した初期地層水が改良剤によって置き換えられたためと考えられる。特に、地盤改良剤の場合は分散媒として水が使われることが多く、濡れ性の影響を受けることなく地層水が置換されるため、初期地層水の塩分濃度は改良体の物性に大きな影響を与えにくいと考えられる。

7.2.4 地層温度と養生期間

地層温度は、改良剤の化学的反応性に影響を与えるため、その強度発現のための所要期間に大きく左右する。そのため、本研究では、地層温度と養生期間による改良体の物性への影響を同一実験により評価した。なお、7.1.4 および 7.2.2 の実験では、改良剤の固結時（注入から 12 時間後）に i-BH が殆ど分解し残存しないため、本実験では MH が完全に分解した水層を想定し、模擬ハイドレートを含まない供試体を用いた。これらの供試体に同一条件で改良剤を注入し、異なる養生温度における供試体の物性の経時変化を測定した。また、養生温度については、(1) 模擬ハイドレート TH の生成および維持温度 = 3℃、(2) 南海トラフ MH 層の温度 = 13℃（図 2-2）、および (3) 地盤改良剤の性能を評価するための実験室の通常室温 = 23℃と、10℃間隔で計 3 パターンを設定した。さらに、各温度パターンにおいて、促進剤の使用の有無による養生日数に対する供試体の物性変化についても検討した。その実験条件を表 7-10 に示す。

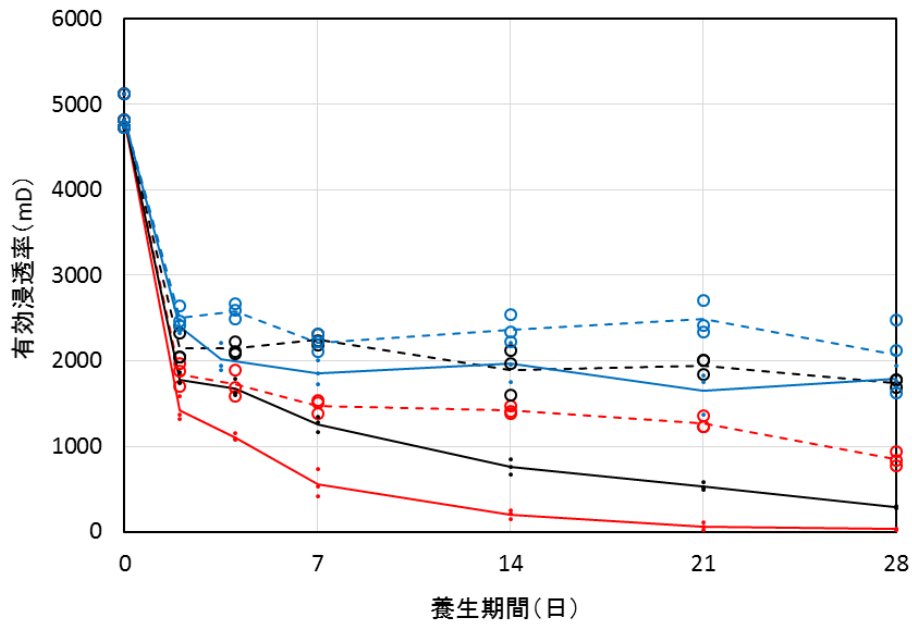
表 7-10 地層温度および養生期間による影響を検証するための
実験条件

| 項目 | パラメータ |
|----------------|---|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | なし |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 20w% |
| 配合剤濃度 | 0.3w% |
| 促進剤濃度 | 0または30 (g/L) |
| 注入温度 | 23℃ |
| 養生温度 | 3, 13, 23 (℃) |
| 注入圧力 | 上流圧: 1atm+15kPa 下流圧: 大気開放 (1atm) 差 圧: 15kPa |
| 注入停止基準 | 回収液体が 100mL に達した時 |
| 養生期間 (測定時期) | 2, 4, 7, 14, 21, 28 (日) |
| 測定パラメータ | 固結後の有効浸透率 一軸圧縮強度 (UCS) |

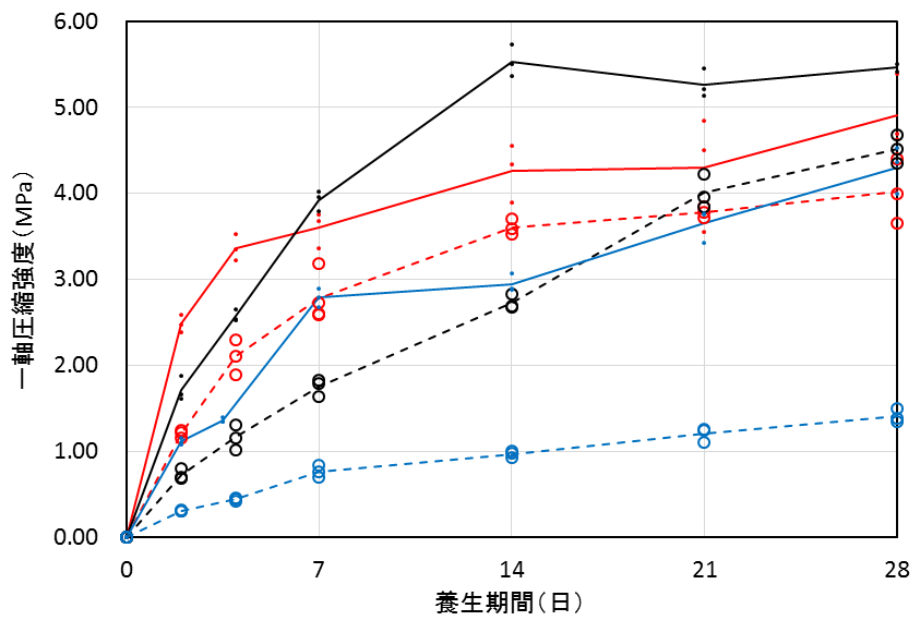
図 7-19 に, 異なる温度パターンにおける, 促進剤の添加有無による改良体の物性の経時変化を示す. いずれの養生温度においても, 供試体の一軸圧縮強度が 1MPa 以上に達した. そのうち, 23℃で養生したケースは初期強度が最も高く, 促進剤を使用しなくても僅か 2 日間で 1.2MPa に達し, 約 7 日後には安定期に入りゆっくりと増加していく. 一方, 3℃で養生したケースでは強度発現が遅く, 促進剤を使用しない場合は一軸圧縮強度 = 1MPa に達するまで 14 日間以上を要し, 28 日後の強度は僅か 1.4MPa に止まった. これは, 養生温度がセメントの水和反応速度に著しく影響を与えたためと考えられる. また, 13℃で養生したケースでは, 初期強度発現は 3℃と 23℃の中間程度であるが, その後も強度が増加し続け, 21 日目 (促進剤を使用した場合は 7 日目) に 23℃で養生したケースを抜き, 3 パターンの中で最上位になった. これは, 養生温度によるセメント固結物の結晶成長特性に起因したと思われる. さらに, 促

進剤を使用し 13℃で養生したケースでは、21日目頃に強度が一時低下したが、その後回復し、概ね安定した数値を示した。これは、促進剤がセメントの水和反応に関与し、反応プロセスごとに異なる固結物質を生成したためと考えられる（図 7-20）。また、本実験のいずれの温度域においても、促進剤を使用した場合は未使用の場合に比べて高い一軸圧縮強度が得られた。特に、初期強度発現の段階や、低温域で養生する場合には、促進剤を使用することで供試体の強度を著しく向上させることから、養生日数の短縮とそれに伴うコストの削減に寄与できると考えられる。

一方、各供試体の浸透率は初期値と比べ大幅に低下し、養生温度が高いほど低下幅が大きくなる傾向を示した。また、同じ養生温度でも、促進剤を使用した場合には、未使用の場合と比べて浸透率が著しく低下したことが確認された。さらに、低温域（3℃）または促進剤未使用の場合には、注入から 2 日目より浸透率が概ね安定したのに対し、常温域（13～23℃）または促進剤を使用した場合には、有効浸透率が実験期間中（28 日間）低下し続けたことが明らかになった。ただし、3℃で養生したケースでは、促進剤を使用しても浸透率の低下が限定的であり、概ね 1500mD 以上の高浸透率を維持できた。これも養生温度と促進剤の有無がセメントの水和反応に影響を与えたためと考えられる。このうち、13℃で促進剤を使用したケースでは、7日目の浸透率が 1258.2mD、28日目の浸透率が 284.8mD であることから、南海トラフの温度条件では十分な浸透性を有する改良体を形成できると考えられる。さらに、アラスカ陸上鉦区の MH 層の温度は 5～10℃と推定されるが（図 2-2）、この温度域では純粋なセメント系改良剤では十分な強度発現を期待できないため、促進剤の使用が強く推奨される。

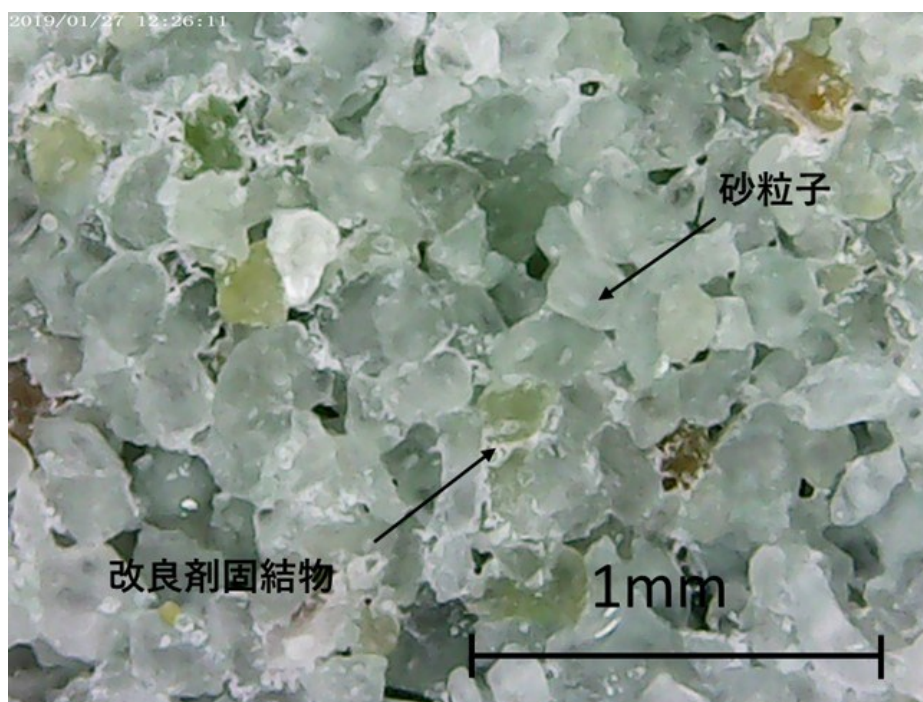


(a)

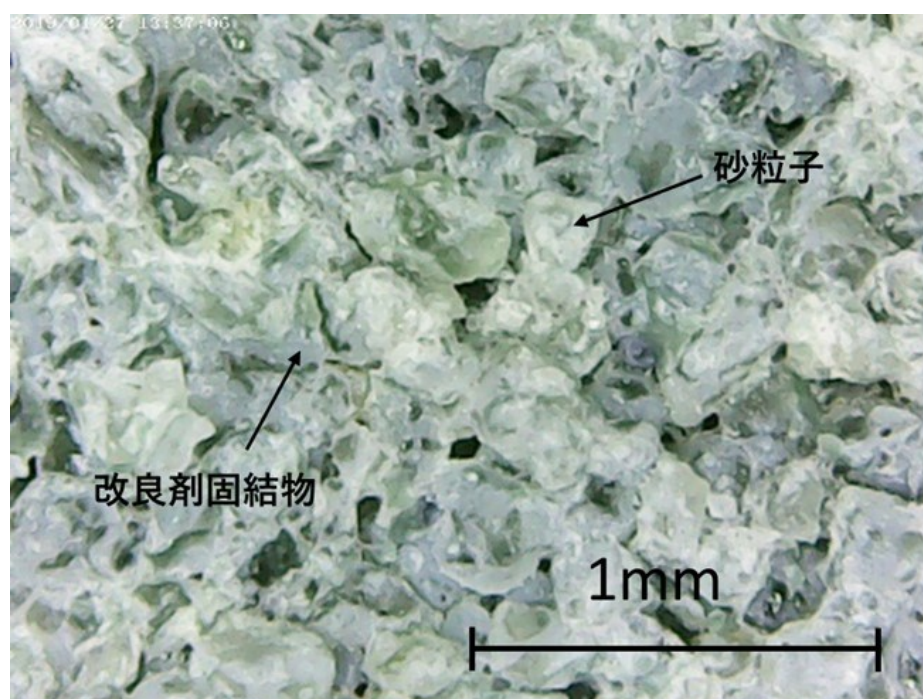


(b)

図 7-19 養生温度ごとの改良体の物性の経時変化
(a) 有効浸透率, (b) 一軸圧縮強度



(a)



(b)

図 7-20 28日養生後の供試体の実体顕微鏡写真

(a) 促進剤不使用, (b) 促進剤使用

促進剤不使用の供試体と比べ, 促進剤を使用した場合は固結物が多く生成し, その形態も大きく異なることが確認できる.

7.2.5 改良剤の配合温度

前節の実験では、地層温度すなわち養生期間中の温度条件が改良剤の反応メカニズムや供試体の物性に大きな影響を与えることを判明したため、改良剤の配合（調製）時の温度もその性質や性能の発揮に影響を与える可能性があるとして予想される。その影響を解明するためには、本実験では同一成分の改良剤を常温（室温 = 23℃）または低温（i-BH の実験温度 = 0℃）でそれぞれ調製し、0℃まで冷却した後に同様な供試体（模擬ハイドレート無し）に注入した。なお、改良剤には、低温時の強度発現を向上させるために促進剤を使用した。その後、両組の供試体を 0℃ で長期間養生し、その固結効果や物性の変化を調べた。表 7-11 にその実験条件を示す。

表 7-11 改良剤の配合温度による影響を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|----------|---|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | なし |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 30w% |
| 配合剤濃度 | 0.45w% |
| 促進剤濃度 | 60g/L |
| 調製液の温度 | A組: 23℃ (室温) B組: 0℃ (i-BH の実験温度) |
| 注入・養生温度 | 0℃ |
| 温度冷却方式 | 冷却液に浸したステンレス容器に入れ, 凝集を防ぐように継続した振とうを与える |
| 注入圧力 | 上流圧: 1atm+15kPa 下流圧: 大気開放 (1atm) 差 圧: 15kPa |
| 注入停止基準 | 回収液体が 100mL に達した時 |
| 養生期間 | 7, 30, 60 (日) |
| 測定パラメータ | 固結後の有効浸透率 一軸圧縮強度 (UCS) |

図 7-21 には，室温で調製した後に 0℃まで冷却した改良剤を注入した A 組と，最初から 0℃で調製した改良剤をそのまま注入した B 組，の供試体における経過時間に対する物性の変化を示す．A 組は 7 日目に一軸強度が 3.31～4.17MPa に達したのに対して，B 組の場合は 60 日間経っても十分に固結できず，慎重に押し出したにもかかわらず成形作業中に破断し，室内実験に耐えられるような強度を有しなかった（図 7-22）．また，B 組 3 本の中の 1 本を何とか成形して測定を行ったものの，浸透性や強度が非常に低く，出砂を防ぐための性能を有しないことが分かった．さらに，B 組の供試体は成形時に流出した孔隙水が濁っており，未水和・未固結の改良剤の固形成分が含まれると推測される．これは，調製液の初期温度が改良剤の化学特性に大きな影響を与え，その後の水和反応を妨害または抑制したと考えられる．このような改良剤の固形成分が浸透率の測定時に流動し，孔隙を塞ぐことで，改良剤が良好に固結した A 組よりも有効浸透率が低いことになったと推定される．以上のことから，調製液の初期温度は改良剤の性能に大きな影響を与えることが明らかになった．なお，実際のフィールド生産では常温（20～30℃）で薬剤を調整することが多いため，調製液の温度低下による固結不良等のトラブルが発生する確率が低いですが，極地鉱区での操業や室内実験において 0℃の改良剤を作成する際には特に注意する必要がある．

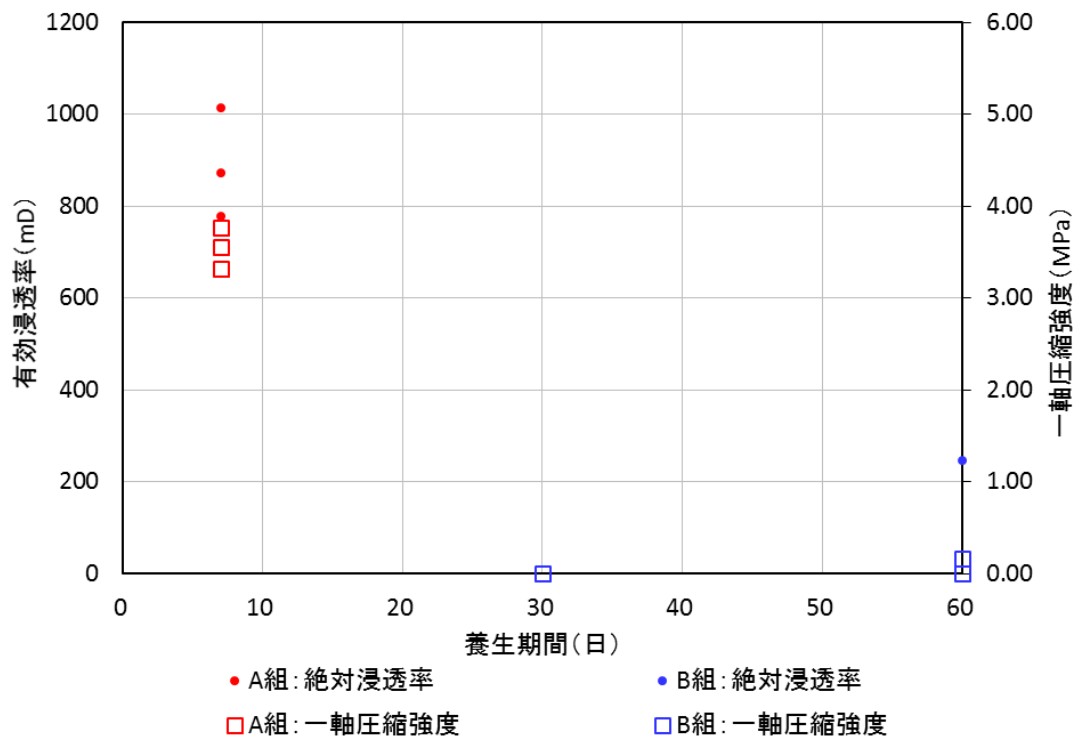


図 7-21 養生日数に対する A, B 両組の供試体の物性変化 (未固結で測定不能なものは一軸圧縮強度 = 0MPa とする)



図 7-22 60日間養生後の供試体 B 組の一例
慎重に押し出したにもかかわらず破損が発生し、
改良剤の水和反応の進行が極めて遅いことが分かる。

7.2.6 インヒビターの濃度

本手法では、インヒビター等により MH 層の飽和率を低下させる前処理を行うが、インヒビターの濃度によりその効果が異なる。また、インヒビターの濃度が高いほど分解促進効果が強いと思われるが、分解ガスの発生具合により注入障害を引き起こす可能性も予想されるため、その影響を検証するための実験を行った。実験では、ガスハイドレート (MH や i-BH) に分解促進効果を有する複数濃度の NaCl 溶液をインヒビターとし、上流圧・下流圧および温度条件を i-BH の安定領域に維持した $S_{iBH} = 40\%$ の供試体に注入し、供試体の下流側で回収したガスおよび液体のレートと累積量の推移からその影響を評価した (表 7-12)。

なお、供試体の下流側で回収した「分解ガス」および「透過した改良剤」には、注入開始前に供試体の孔隙や装置の配管内に存在した少量のガスや i-BH の分解で生成した少量の水が含まれるため、本研究では「分解ガス」、「注入レート」の代わりに、「回収ガス」、「液体回収レート」またはそれに類する用語に統一した。

表 7-12 インヒビターの濃度による影響を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|---------------|--|
| 使用装置 | 4号機 B, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂 7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | i-BH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 40% |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | NaCl (食塩) 溶液: (3%, 5%, 10%, 15%, 20%) |
| 注入温度 | 0°C |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧: 150 下流圧: 130 差 圧: 20 |
| 注入停止基準 | ガスの分解が終盤に近づいた時, または注入開始から 1 時間経過後 |
| 測定パラメータ | 下流側におけるガス・液体の 回収レートと累積量 |

図 7-23 に、 S_{iBH} = 40% の供試体に濃度 = 3% ~ 20% のインヒビターを注入する際の分解ガスの挙動を示す。いずれのケースにおいても、注入開始直後にガス回収レートの急低下が観測されたが、これは i-BH の分解に伴い供試体の温度が低下したためである。インヒビターの濃度が低い (3%, 5%) 場合は、ガス回収レートが低い数値に安定し、液体回収レートが横ばいまたは微増した傾向が見られた。これは、コアセルの材質は熱伝導が小さく、周囲から供試体への熱供給が限られたためである。また、計測開始から約 5min 後には、供試体を通過したインヒビターが計測ユニットに到達し、高濃度 (10% ~ 20%) のケースではガスと液体の回収レートの急上昇も確認された。その後、インヒビター濃度 = 15% のケースを除き、液体回収レートはおおむね 3 ~ 4 mL/min と暫く安定した後、再び上昇に転じた。これは、過去の TH を用いた注入実験時に、注入開始から 5min が経過すると回収レートが 30 mL/min 以上に上昇した結果とは対照的であった。その原因は、7.1.4 および 7.2.2 の実験と同じく、1) i-BH の表面で発生した分解ガスは、i-BH とインヒビターとの接触を妨害し、インヒビターの注入レートの上昇を一時的に抑制したことと、2) 分解ガスの発生で孔隙圧が上昇し、薬剤注入のための圧力勾配を抑えたこと、および 3) 分解ガスによる気泡の毛細管圧力が薬剤の注入抵抗に加わったこと、が考えられる。ただし、濃度 = 15% のケースでは、この妨害作用がほとんど確認できず、過去の TH 実験と類似した傾向が見られた。これは、供試体の不均質により浸透性が高い流動通路 (ワームホール) が形成されたため、流体回収レートの継続上昇と、i-BH との接触面積の拡大によるガス回収レートの急上昇を引き起こしたと推測される。ただ、いずれのケースにおいても、前述 TH 供試体の場合と比べ浸透性の改善には遙かに長い時間を要したことから、浸透性の改善を確認した時点では i-BH の残量が極めて少なくなっていたことから、i-BH による分解ガスが少量に存在しても注入障害を引き起こすリスクがあることが明らかになった (表 7-13)。

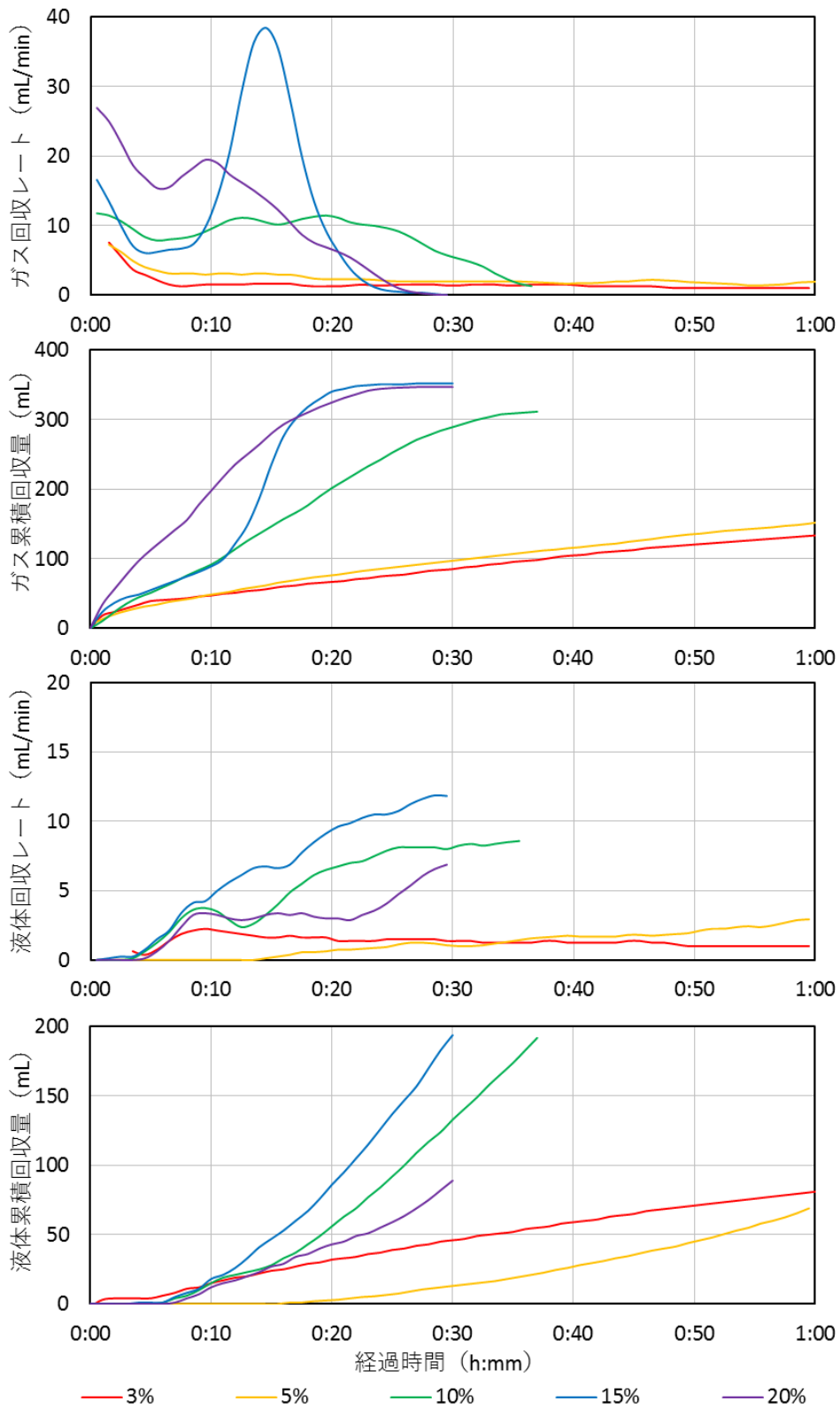


図 7-23 複数の濃度を有するインヒビターの注入による分解ガスと通過液体の回収レートおよび累積回収量

表 7-13 インヒビターによる TH および i-BH 供試体の
浸透率改善の実験結果一覧

| 模擬ハイドレート | インヒビター | 浸透率改善の 所要時間 ^{※1} (min) | 改善時の i-BH 残量 ^{※1} (%) | 改善後のレート ^{※2} (mL/min) |
|---------------|-----------------|---------------------------------------|--------------------------------------|-----------------------------------|
| TH (60%) | 純水 | 5 | — | 33.5 |
| | TBAB (2.5w%) | 6 | — | 33.5 |
| i-BH (40%) | NaCl (3%) | × ^{※3} | × ^{※3} | × ^{※3} |
| | NaCl (5%) | 200 ^{※4} | 約 10% | 13.8 |
| | NaCl (10%) | 25 | 約 20% | 8.6 |
| | NaCl (15%) | 28 | 約 20% | 11.9 |
| | NaCl (20%) | 29 | ほぼ 0% | 6.9 |

※1：液体回収レートの上昇が収まり，安定傾向に転じたと判断した時点．

※2：コアセルの内寸，すなわち供試体の寸法を考慮し補正を行った．ただし，インヒビターの温度と粘度，および実験装置の配管における流動抵抗は未補正である．

※3：制限時間（1h）内に明確な浸透率の改善を確認できなかった．

※4：特例で注入時間を延長した結果である．

7.2.7 インヒビターの注入停止タイミング

前節の実験では、少量の *i*-BH (ガスハイドレート) が残存しても薬剤の注入に著しい支障を与えることが判明した。しかし、インヒビターによる MH 層の前処理後に改良剤に切り替えるが、その際の MH 残存飽和率は 0% にすることが困難であるため、分解ガスによる注入障害や排出作用を受ける可能性が予想される。そのため、インヒビターの注入停止タイミング、すなわち残存 *i*-BH (ガスハイドレート) 飽和率による分解ガスの挙動への影響を解明する実験を行った。実験では、初期飽和率 $S_{iBH_i} = 40\%$ の *i*-BH 供試体 2 組を用意し、高濃度インヒビター (20%) を 7.2.6 の実験と同一温度、圧力条件で注入した (表 7-14)。また、注入を停止するタイミングとしては、計測ユニットで回収したガスの体積から、供試体の *i*-BH 残量がそれぞれ 0%, 50% になったと判明した時点とした。さらに、インヒビターの注入および *i*-BH の分解に伴う供試体の温度変化を計測するために、供試体の中間部位に温度センサーを設置した。なお、温度センサーのプローブは直径が小さいため、供試体内における流体の挙動には影響がないものと考えた。

表 7-14 インヒビターの注入停止タイミングによる影響
を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|---------------|---|
| 使用装置 | 4号機 B (温度センサー付きコアセル), ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂 7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | i-BH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 40% |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | NaCl (食塩) 溶液 (20%) |
| 注入温度 | 0℃ |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧 : 150 下流圧 : 130 差 圧 : 20 |
| 注入停止基準 | A : i-BH の残量 = 0% の時点 ($S_{iBH} = S_{iBH_i} \times 0\% = 0\%$) B : i-BH の残量 = 50% の時点 ($S_{iBH} = S_{iBH_i} \times 50\% = 20\%$) |
| 測定パラメータ | 下流側におけるガス・液体の 回収レートと累積量, 温度変化 |

図 7-24 に, 経過時間に対する回収ガスおよび液体の挙動を示す. A, B 両組とも, 注入開始から約 5 分後に計測ユニットに液体が到達し, その回収レートが緩やかに上昇していた. 注入開始から 9 分後には, ガスの累積回収量から供試体の i-BH 残量が半減した ($S_{iBH} = 20\%$ になった) と確認し, B 組供試体の上流側にある注入弁を停止させた. その後, A 組は注入を続けたものの, 液体回収レートは約 10min 程度にわたり 3mL/min 程度に安定していた. さらに, i-BH の分解がほぼ終了し, ガス回収率が 97% に達した時には, A 組の液体の回収レートが再び上昇したことを確認した. これは, 7.2.6 の注入実験 (インヒビター濃度 = 20% のケース) の結果とほぼ同じ傾向を示しており, 分解ガスの発生が薬剤の注入を妨害したこと, 少なくとも注入レートの上昇を抑制したことを示唆した.

一方, B 組では, 注入停止後にもガスの発生が続いており, 若干回収レートが低いものの最終回収量は A 組とおおむね同じであった. これは, 1) 孔隙内で発生した分解ガスはインヒビターを完全

に排出することが困難であること（薬剤残留）や、2）インヒビターに使用した NaCl 溶液は濃度が高く、i-BH の分解で発生した水では十分に希釈されないことが原因と考えられる。また、B 組では、液体の累積回収量はわずか 16mL であり、A 組の最終液体回収量（90mL）と比べはるかに少ないことから、この薬剤残留効果を生かし、一時注入または断続注入を行うことでインヒビターの使用量を減らすことが可能と考えられる。

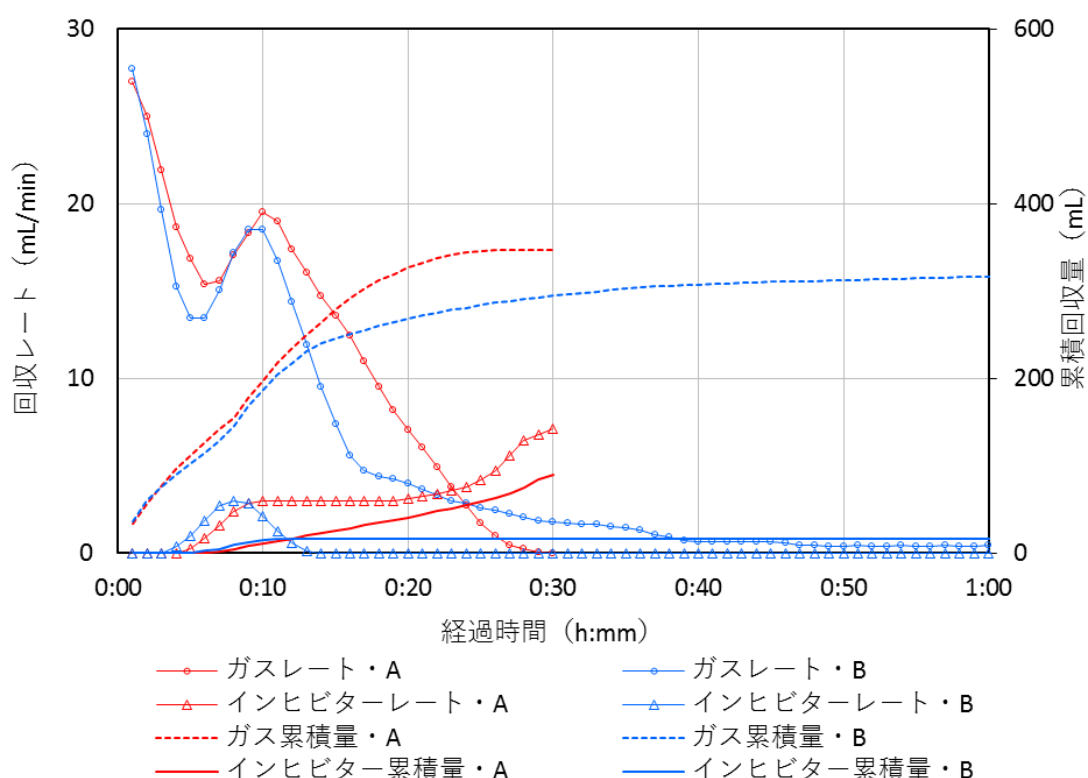


図 7-24 インヒビターの注入停止タイミングによるガスと液体の回収レートと累積量（いずれも常温常圧換算値）

さらに、インヒビター注入時における供試体中心部の温度変化を図 7-25 に示す。注入開始直後には、i-BH の分解に伴い温度が急低下したが、分解レートの低下に伴い温度が回復傾向に転じた。そのうち、i-BH の分解レートが低い B 組よりもインヒビターを注入し続けた A 組の方が温度の回復が早かったが、これはインヒビター（0℃）自体が供試体に熱を供給したためである。すなわち、イ

ンヒビターの注入停止時に大量の i-BH が残った場合は，その分解により貯留層の温度が低下し，薬剤の効果，特に改良剤の初期強度の発現に影響を与える可能性があるため，フィールドにおける注入計画の策定の際に慎重に検討する必要がある．

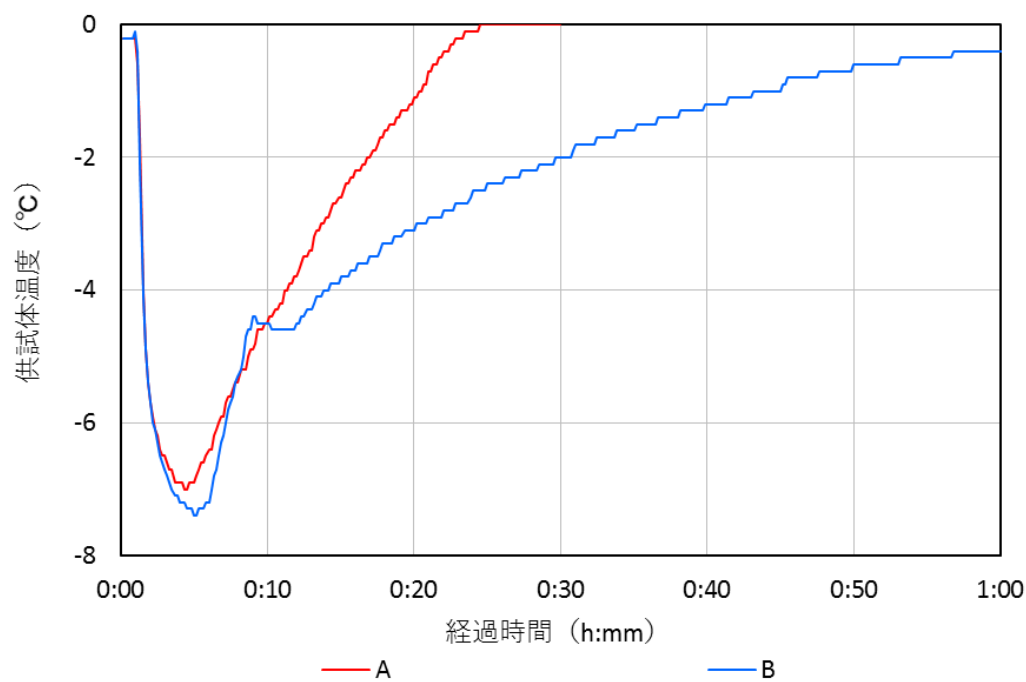


図 7-25 インヒビターの注入停止タイミングによる
供試体中心部の温度変化

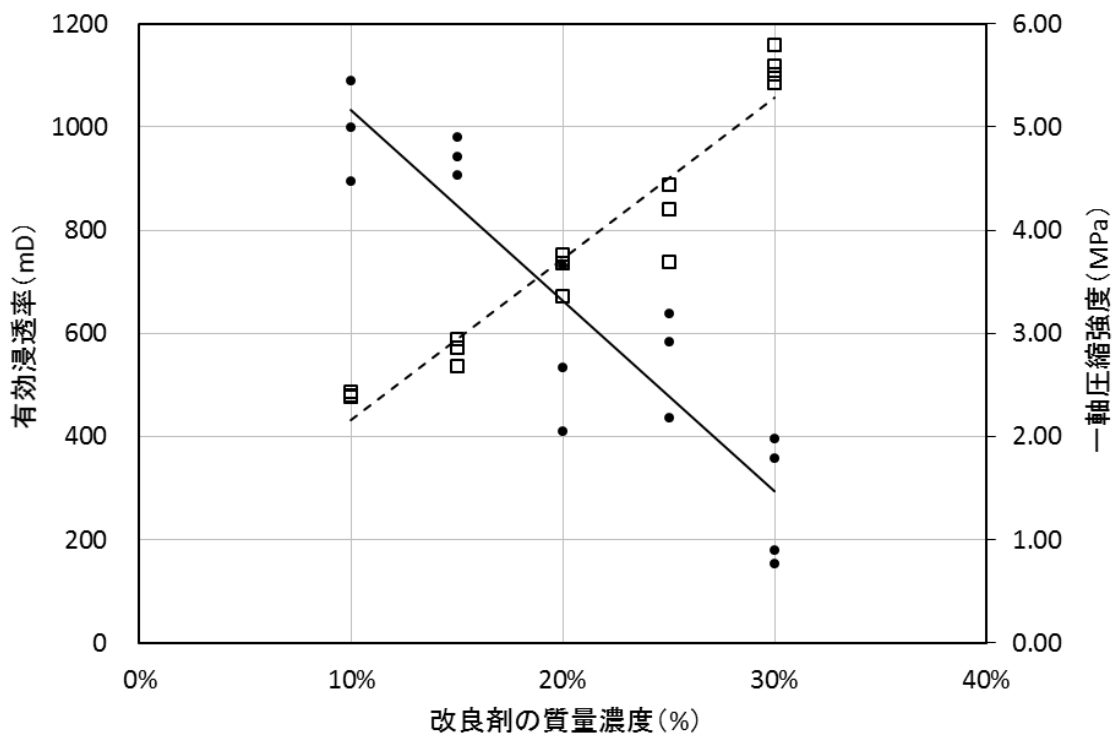
7.2.8 改良剤の濃度

改良剤の濃度は、砂粒子の固化効果を左右するほか、孔隙への充填具合により浸透性にも影響を与える可能性が予想される。そのため、本実験では異なる濃度を有する改良剤を同一の条件の供試体に注入し、その影響を評価した。なお、実際のフィールド操業では、改良剤の養生・固化時に坑井の周辺のMHが前処理により殆ど分解されるため、本実験ではMHが完全に分解した水層を想定し、模擬ハイドレートを含まない供試体を使用した。また、改良剤の濃度については、土木分野における地盤改良工事で常用する濃度範囲（W/C比^{*} = 1000:100～200:100）を参照し、10～30w%の5パターンに設定した。さらに、主剤の濃度に対し、配合剤の濃度を0.15～0.45w%に連動させた。それ以外の実験パラメータを表7-15に示す条件に統一させた。

表 7-15 改良剤の濃度による影響を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|---------------|---|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | なし |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 10～30w%の5パターン |
| 配合剤濃度 | 0.15～0.45w%の5パターン |
| 促進剤濃度 | 30g/L |
| 注入温度 | 23℃ |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧: 1atm+15kPa 下流圧: 大気開放 (1atm) 差 圧: 15kPa |
| 注入停止基準 | 回収液体が 100mL に達した時 |
| 測定パラメータ | 固結後の有効浸透率 一軸圧縮強度 (UCS) |
| 養生期間 | 7日間 |

図 7-26 に、改良剤の主剤濃度に対する供試体物性の分布を示す。実験の結果、改良剤の主剤濃度が 10～30 w% の範囲においては、養生後の有効浸透率が 154.7～1089.7mD、一軸圧縮強度が 2.39～5.79MPa の供試体を作製できた。また、主剤濃度の増加に伴い、供試体の強度が向上する一方で、浸透率が大きく低下する傾向を確認した。以上のことから、改良剤の配合比を変化させることで、改良体の浸透率と強度を広範囲で調整可能であることを明らかにした。



● 有効浸透率 □ 一軸圧縮強度 — 線形(有効浸透率) ---- 線形(一軸圧縮強度)

図 7-26 改良剤の主剤濃度に対する供試体物性の分布

7.2.9 促進剤の濃度

永久凍土層下の MH 層等を開発対象とする場合は、MH 層の温度が低く、純正のセメント系地盤改良剤では強度の発現を期待できないため、低温時の強度発現を促進するための添加剤（促進剤）の使用が推奨される（7.2.4）。また、比較的常温に近い MH 層においても、促進剤の使用により養生期間の短縮でき、備船料や人件費の大幅な削減を期待できると考える。このような添加剤は、濃度により効果が異なると考えられるため、その影響を検証する実験を行った。実験では、促進剤として GA-01（E & P 国際商事株式会社）を使用し、その濃度 = 0～150g/L の 6 パターンの改良剤を調製した。それ以外の実験パラメータを全て表 7-16 に示す条件に統一させた。

表 7-16 促進剤の濃度による影響を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|---------------|---|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂 7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | なし |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 20w% |
| 配合剤濃度 | 0.3w% |
| 促進剤濃度 | 0～150g/L の 6パターン |
| 注入温度 | 23℃ |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧: 1atm+15kPa 下流圧: 大気開放 (1atm) 差 圧: 15kPa |
| 注入停止基準 | 回収液体が 100mL に達した時 |
| 測定パラメータ | 固結後の有効浸透率 一軸圧縮強度 (UCS) |
| 養生期間 | 7日間 |

図 7-27 に、促進剤の濃度に対する供試体の物性分布を示す。促進剤使用量の増加に伴い、養生後の供試体の浸透率が低下する一方で、全体として一軸圧縮強度が増加する傾向が見られた。これは、促進剤がセメントの水和反応に関与し、セメント水和物と同様に砂粒子を固結できる物質を生成したためと思われる。一方、促進剤濃度が 60~120g/L の範囲においては、促進剤濃度の増加に対し供試体の物性に著しい変化が見られず、その濃度範囲を超えると浸透率が急激に低下したことを確認した。これは、促進剤は低濃度範囲（0~60g/L）と高濃度範囲（120g/L 以上）において供試体の物性に影響を与える仕組みが異なる可能性、またそれぞれの濃度による改良体は化学的性質にも差異を持つ可能性を示唆している。以上のことから、促進剤の投入量を変化させることで、改良体の物性を広範囲で調整可能である一方、改良体の化学的性質にも影響を与え得ることを確認した。

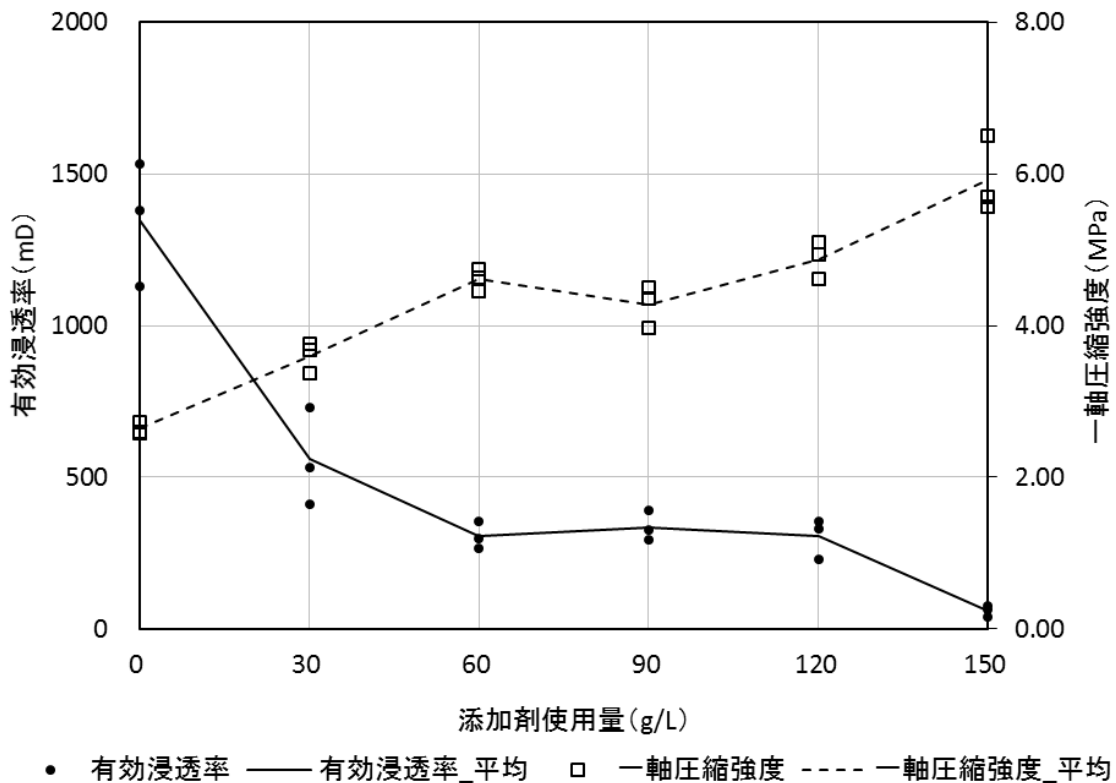


図 7-27 促進剤の濃度に対する供試体の物性分布

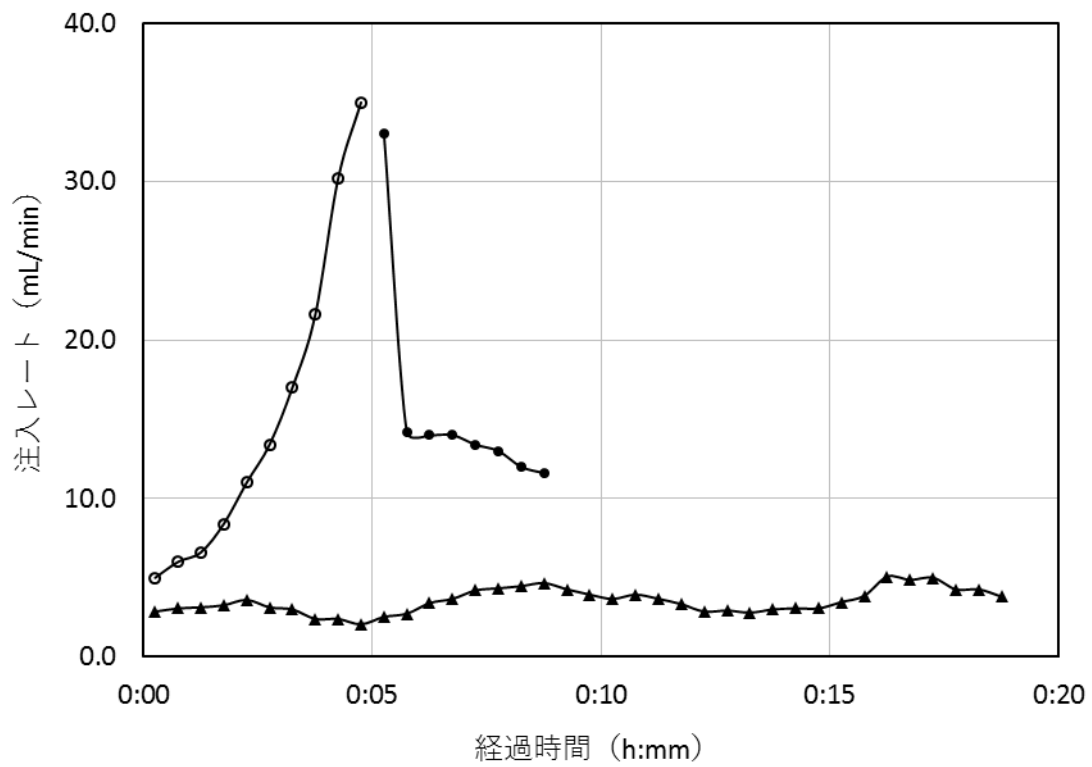
7.2.10 ハイドレート層の浸透率改善方式

7.1.3 項では，ハイドレート（TH）の飽和率を低下させ，供試体の浸透率を改善，すなわち注入効果を向上させる方法として，インヒビターの投入が有効であることを確認した．インヒビターの投入方式は，（A）インヒビターと改良剤を配合して同時に注入する方式（同時注入）と，（B）改良剤を注入する前に，予めインヒビターを注入し MH の飽和率を低下させる前処理方式（先行注入）の 2 方式があるが，その注入方式の違いが改良体の物性に与える影響を検証する実験を行った．実験では，比較的高い飽和率で作成できる TH を模擬ハイドレートとし，TH に分解促進効果を有する純水をインヒビターとして採用した．また，A，B 両組とも，注入方式を除き，注入の温度，圧力および養生条件をすべて統一した．その実験条件を表 7-17 に示す．

表 7-17 浸透率改善方式による影響を検証するための実験条件

| 項目 | パラメータ |
|---------------|---|
| 使用装置 | 3号機，ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂7号，蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | TH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 60% |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | 純水（蒸留水） |
| 改良剤主剤濃度 | 20w% |
| 配合剤濃度 | 0.3w% |
| 促進剤濃度 | 30g/L |
| インヒビターの注入方式 | (A) 同時注入 (B) 先行注入 |
| 注入温度 | 3℃ |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧：1atm+15kPa 下流圧：大気開放（1atm） 差 圧：15kPa |
| 注入切替基準 | インヒビターの注入レート が 35mL/min に達した時 |
| 注入停止基準 | 回収液体が 100mL に達した時 |
| 測定パラメータ | 固結後，TH 分解前後の有効浸透率 一軸圧縮強度（UCS） |
| 養生期間 | 7日間 |

図 7-28 に、両方式による注入レートの変化を示す。先行注入方式の B 組では、インヒビターとなる純水は粘度が低く、かつ TH に対し分解促進効果を有するため、注入開始後にレートが急上昇した。注入開始から 5 分後に、注入レート = 35mL/min と約 7 倍に増加した時点で改良剤の注入に切り替えた。切り替えた直後には、注入レートが一時急低下したが、その後は微減しているものの概ね安定していた。なお、この急低下は、配管内に残存する純水を使い切り、粘度が高い改良剤が供試体に到達したことを意味する。先行のインヒビター注入を含め、改良剤透過量が 80mL に達するまでの所要時間は約 9min であった。一方、同時注入方式の A 組では、注入レートに上下変動が見られたものの、著しい上昇傾向が見られなかった。また、改良剤透過量が 80mL に達するまでは約 19min と、先行注入方式の約 2 倍の時間を所要した。これは、促進剤の副作用の一つである改良剤粒子の凝集効果により目詰りを起こし、それに伴う浸透率の低下がインヒビターの分解促進効果と相殺したためと考えられる。すなわち、促進剤を使用する場合、或いは目詰りが起こりやすい細粒砂、高飽和率のハイドレート層の場合は、同時注入方式よりも先行注入方式のほうが有効であることが明らかになった。



▲ A・インヒビター配合改良剤 ● B・改良剤 ○ B・インヒビター

図 7-28 注入方式の違いによる注入レートの変化

A：同時注入， B：先行注入

図 7-29 には，両方式による供試体の物性分布を示す．いずれの供試体も，十分な浸透率を確保しつつ，7 日目に 1MPa 以上の強度を発現した．そのうち，先行注入方式による供試体は，同時注入方式の場合と比べ，改良剤注入・養生後の浸透率が約 1.8 倍高く，TH 分解後の強度が約 1.4 倍高いことが分かった．これは，インヒビターの先行注入により供試体の TH 飽和率が低下し，浸透率が改善されたためである．また，TH 分解後の浸透率については，両方式とも大差がなく 2000mD 以上の高値を示した．ただ，TH 分解前後の浸透率の増加率を見れば，先行注入方式では 57.1%であるのに対し，同時注入方式の場合には 306.6%に達した．これは，同時注入方式の場合には TH に対する分解促進効果が弱く，薬剤を注入し終えた時点で供試体の TH 飽和率が高かったためである．そもそも，先行注入方式は，飽和率を大きく下げてからの同時注入方式と見なせるため，最初から同時注入するより遥かに有利であると考えられる．

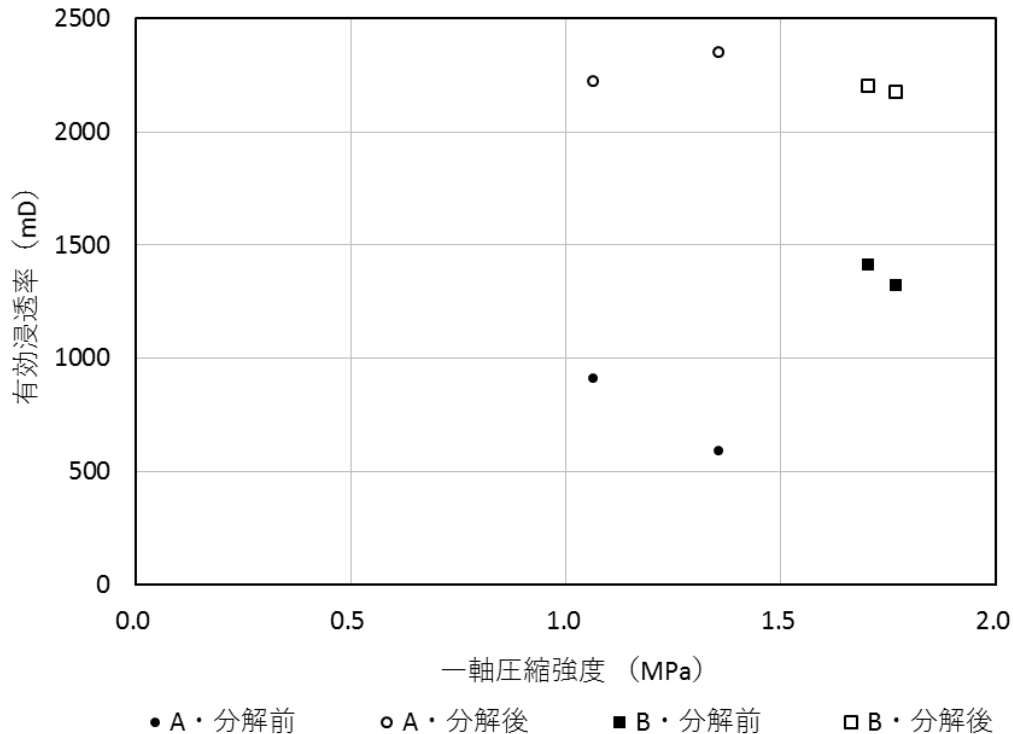


図 7-29 注入方式の違いによる供試体の物性分布

A：同時注入，B：先行注入

7.2.11 改良剤の注入停止タイミング

これまでの実験では、分解ガスによる薬剤の排出作用と残留効果を確認した。また、i-BH 供試体を作る段階において定量排水により残留水飽和率を調整できることから、分解ガスの発生具合すなわち改良剤の注入終了時の残留 i-BH 飽和率も薬剤の排出作用と残留効果に影響を与える可能性が予想される。そのため、複数の i-BH 供試体に同一の改良剤を注入し、その注入停止タイミングを変えることで、残存する i-BH の飽和率による分解ガスの挙動や固結後の供試体の物性への影響を検討した。その実験条件を表 7-18 に示す。なお、初期 i-BH 飽和率が低い供試体では上記効果が不明瞭であることと、初期 i-BH 飽和率が高い場合は注入時間が長く、実質的な注入開始時の i-BH 飽和率が 10%～15%前後であったことから、本節における供試体の初期 i-BH 飽和率を $10\% \leq S_{iBH} \leq 30\%$ に絞った。また、改良剤の注入停止タイミングとして、下流側のガス回収量から A) i-BH が全部分解したと判断した時点と、B) i-BH がおよそ半分分解し、半分が残ったと判断した時点、の 2 パターンにした。

図 7-30 に、A、B 両組における改良剤注入時のガスと液体の回収レートと累積回収量を示す。i-BH が約半分残った状態で注入を停止した B 組では、注入停止後にもガスが大量に発生し続け、一時的に改良剤注入中のガス回収レートよりも上回ったことを確認した。これは、改良剤の排出に伴い孔隙中のガス相飽和率が上昇し、ガス相の相対浸透率、すなわちガスの排出しやすさが向上したためである。また、注入を停止した直後の B 組の液体回収レートも、A 組の場合と比べて緩やかに低下しており、より多くの改良剤が排出されたことが示唆された。

さらに、図 7-31、7-32 に、A、B 両組における固結後の供試体の物性の比較を示す。早期に注入を停止した B 組は、A 組の場合と比べ乾燥密度（改良剤固形物質含有量）と一軸圧縮強度が著しく低いことが分かった。また、初期 i-BH 飽和率が高い（すなわち注入停止時の残存 i-BH 飽和率も高い）ほど、この差が大きくなることが確認できる。一方、早期停止の B 組では、浸透率の分布には明確な傾向が確認されており、初期／注入停止時の i-BH 飽和率が高

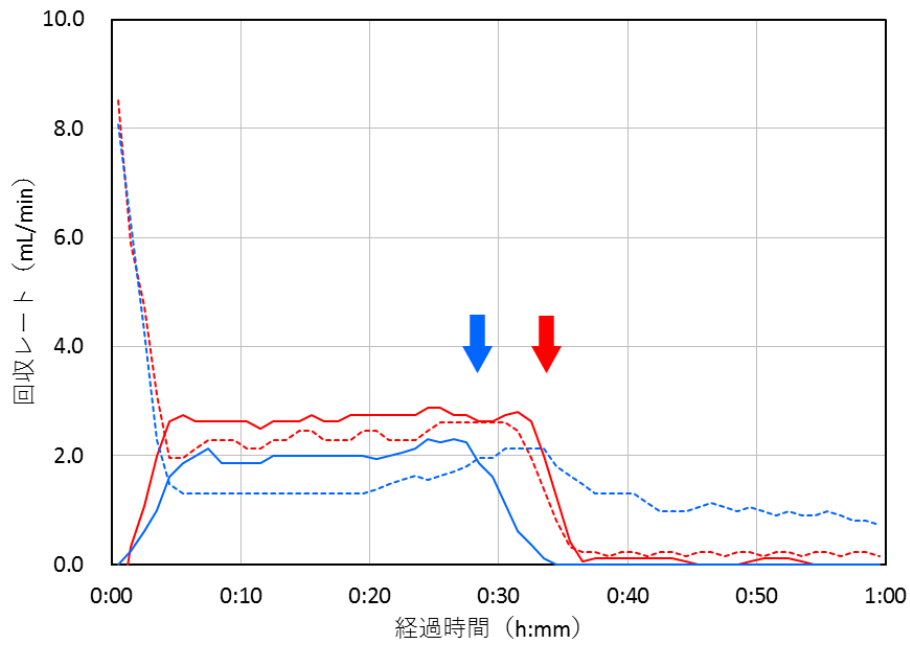
いほど、固結後・i-BH 分解後の浸透率が高くなることが明らかになった。この点は、i-BH が全部分解するまで注入し続けた A 組において浸透率のバラツキが大きく、明確な分布傾向が見られなかったこととは対照的である。その原因については、注入停止時の i-BH 飽和率が高いほど分解ガスにより排出する改良剤の量が多くなり、孔隙に残留して固化する割合が減るが、i-BH が全部分解するまで注入し続けた場合は注入停止時の i-BH 飽和率がそれほど大きな差がないからである。以上のことから、分解ガスの発生を伴う i-BH 供試体への改良剤注入では、注入前の初期 i-BH 飽和率よりも、注入停止時の i-BH 残存飽和率のほうが、供試体の物性に大きな影響を与えることが明らかになった。

表 7-18 改良剤の注入停止タイミングによる影響を検証するための実験条件

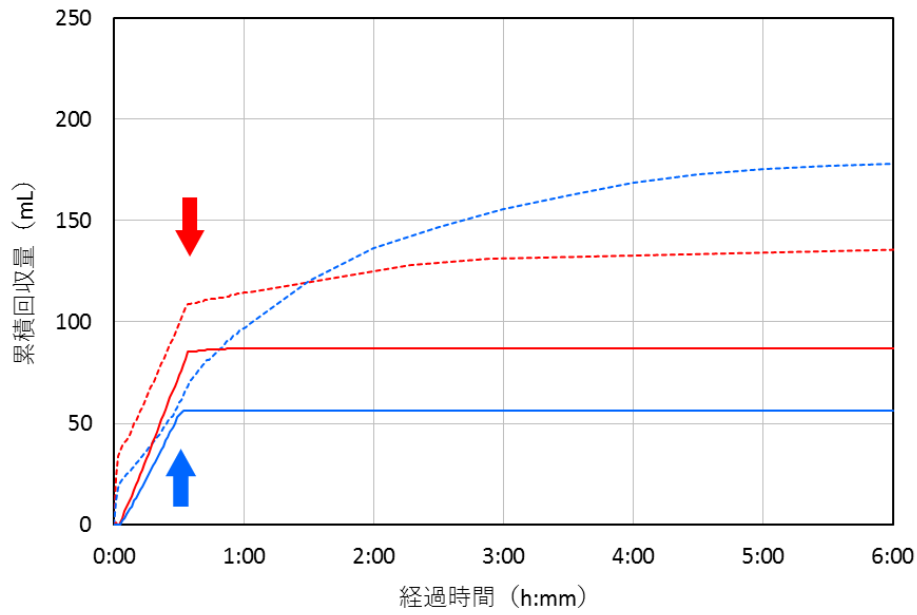
| 項目 | パラメータ |
|---------------|--|
| 使用装置 | 4号機 B, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂 7号, 蒸留水 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | i-BH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 10~30 (%) *1 |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | なし |
| 改良剤主剤濃度 | 30w% |
| 配合剤濃度 | 0.45w% |
| 促進剤濃度 | 60g/L |
| 注入温度 | 0℃ |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧：150 下流圧：130 差 圧：20 |
| 注入停止基準 | ガス回収量から， A：i-BH の残量 = 0% の時点 B：i-BH の残量 = (50±10)% *2 の時点 |
| 測定パラメータ | 下流側におけるガス・液体の 回収レートと累積量， 固結後，i-BH 分解後の有効浸透率， (排水後の) 乾燥密度， 一軸圧縮強度 (UCS) |
| 養生期間 | 7日間 |

※1：計画値であり，ガスの最終回収量から求めた実際の飽和率とは若干の誤差がある。

※2：装置作動の都合上，弁の操作は若干前後する場合がある。



(a)



----- A・ガス ——— A・液体 ← A・注入停止
 ----- B・ガス ——— B・液体 ← B・注入停止

(b)

図 7-30 改良剤の通常注入および早期停止の場合における
 ガスと液体の回収レートと累積回収量の一例
 (a) : i-BH の残量 \approx 0%時に停止
 (b) i-BH の残量 = (50 ± 10) %時に停止

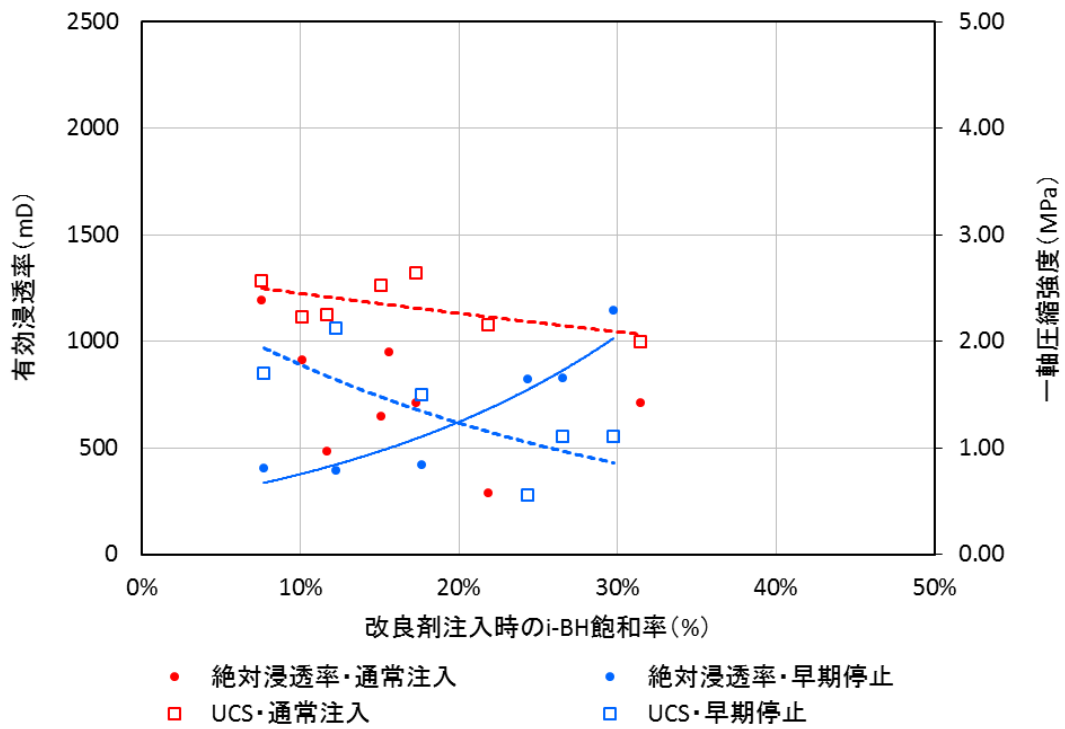


図 7-31 改良剤の通常注入および早期停止の場合における供試体の有効浸透率と一軸圧縮強度の比較

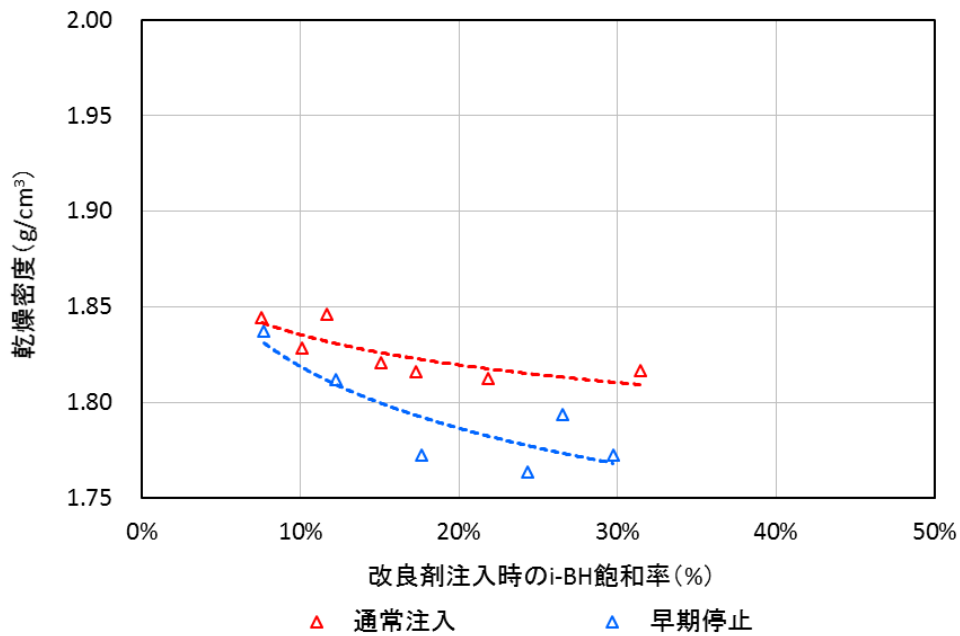


図 7-32 改良剤の通常注入および早期停止の場合における供試体の乾燥密度の比較

7.3 ケーススタディ

前記 7.1, 7.2 から得た知見に基づき, 模擬ハイドレートを含む砂層において本手法により作製可能な改良体のポテンシャルを探るケーススタディを行った. ケーススタディでは, 高飽和率で作製できる TH を模擬ハイドレートとし, $S_{TH}=60\%$, $S_{TH}=80\%$ の供試体に異なる配合比を有する改良剤を注入するケース A~E, および $S_{TH}=0\%$ の供試体に同一改良剤を注入する参照ケース F, G を実施した. 各ケースの共通実験条件を表 7-19 に, 各ケースにおける初期 TH 飽和率と促進剤濃度を表 7-20 に示す. なお, 南海トラフの MH 層の初期塩分濃度は 35,000ppm であるが, 塩分の存在が TH の作製に影響があることや, 初期地層水が改良剤に置き換えられ, 改良剤の固化効果に大きな影響を与えないことから, 供試体の初期塩分濃度を 0ppm とした. また, 全てのケースにおいてインヒビターの先行注入方式を採用した. 注入後の供試体を 3°C の冷水中で 7 日間養生し, TH 分解前後の物性を計測した. さらにケース E では, 注入ツールの動作不良を想定し, インヒビターから改良剤への切り替え時間を 30min 遅らせ, その間, 改良剤を低温配管に静置させていた. それに伴う改良剤の凝集による目詰りと物性への影響を確認した.

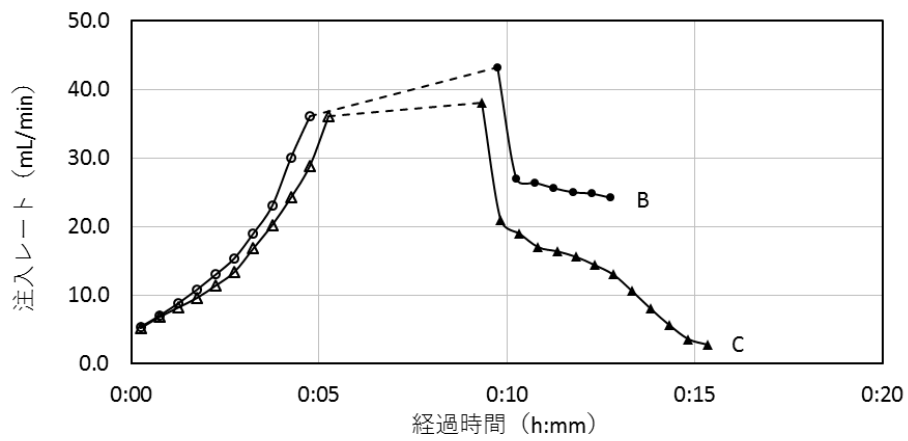
図 7-33 には, 各ケースの注入レートを示す. いずれのケースでも, 注入レートはインヒビター注入により急上昇したが, 改良剤に切り替えた直後に急落したことを確認した. また, ケース B, D, F (促進剤濃度 = 60g/L) では注入レートが安定したのに対し, ケース C, E, G (促進剤濃度 = 90g/L) の場合には, 注入レートの著しい低下が観測された. この現象は, 高濃度促進剤による改良剤粒子の凝集に伴う目詰りが原因と考えられる. また, インヒビターの注入終了時よりも, 改良剤の注入開始時の方が, 注入レートは高い数値を示した. これは, 孔隙中に注入したインヒビターが, 切り替え作業の間にも TH の分解を促進し続けたためである. さらにケース E では, 冷却配管に 30min 静置した改良剤は, ケース A~D (切り替え時間 = 5min) と比べ, 注入再開後の急落幅が高かったことが判明した. これは, 改良剤粒子は静置すると凝集し始める性質を有

するため、静置時間が長いほど多孔質媒体への透過性が低くなるためである。一方、30min 静置した改良剤でも、インヒビターなどで浸透性を十分改善しておけば、多少の目詰りを起こすものの注入可能であることを確認した。

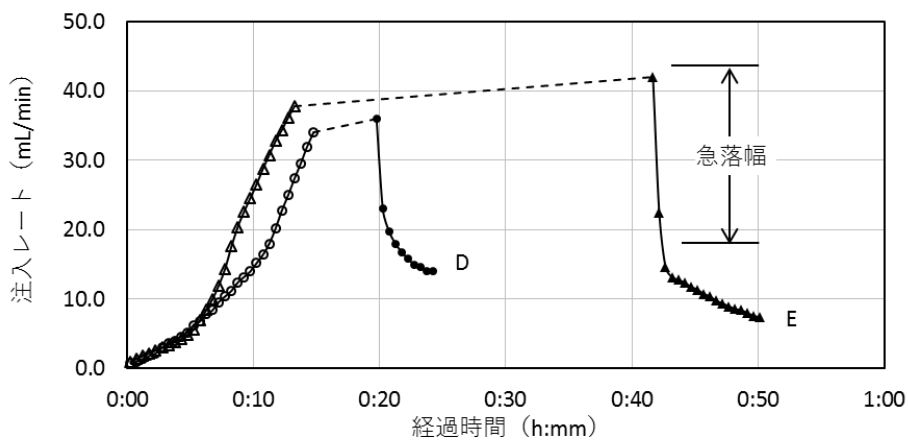
一方、表 7-20 には、各ケースによる供試体の 7 日目の平均物性を示す。促進剤の使用量が少ないケース A 以外は、全てのケースで一軸圧縮強度 > 5.0MPa と高い強度を実現した。このうち、ケース A, B, D (促進剤濃度 ≤ 60g/L) では、TH 分解前後とも良好な浸透性を有しており、浸透性と強度の維持を両立したと言える(図 7-34)。また、これらの供試体は、インヒビター・薬液注入・養生後の浸透率が注入前の初期値よりも高く、かつ、インヒビター・薬液注入・養生後と TH 分解後の乾燥密度に大差がないことから、インヒビターの使用により TH 飽和率を低下させたことを裏付けている。

表 7-19 ケーススタディの実験条件

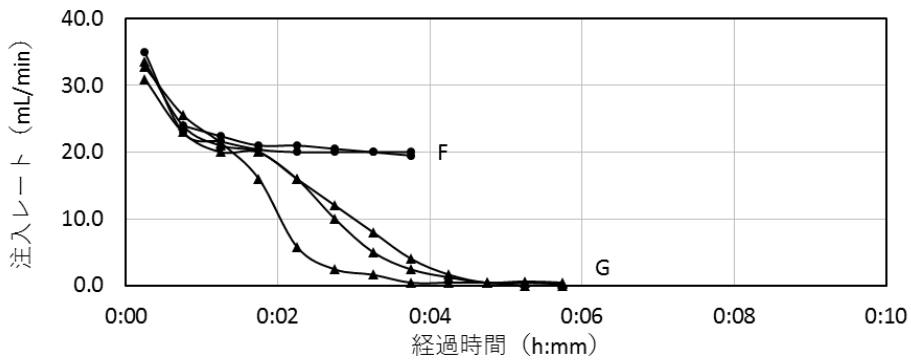
| 項目 | パラメータ |
|-------------|---|
| 使用装置 | 3号機, ほか |
| 模擬地層材料 | 東北硅砂7号, TBAB溶液 |
| 孔隙率 | 38% |
| 模擬ハイドレート | TH |
| 模擬ハイドレート飽和率 | 0 (参照ケース), 60, 80 (%) |
| 初期塩分濃度 | 0ppm |
| インヒビター | 純水 (蒸留水) |
| 改良剤主剤濃度 | 30w% |
| 配合剤濃度 | 0.45w% |
| 促進剤濃度 | 30, 60, 90g/L |
| 注入・養生温度 | 3℃ |
| 注入圧力 (kPa) | 上流圧: 1atm+15kPa 下流圧: 大気開放 (1atm) 差 圧: 15kPa |
| インヒビター注入目安 | 透過レート = 35ml/L に達するまで |
| 薬液切り替え時間 | 5 または 30min |
| 注入停止基準 | 改良剤の注入量が 100mL に達した時 |
| 測定パラメータ | 下流側における液体の回収レート, 固結後, TH 分解前後の有効浸透率, 乾燥密度, 一軸圧縮強度 (UCS) |
| 養生期間 | 7日間 |



(a)



(b)



○— 60g/L_インヒビター ●— 60g/L_改良剤
 ▲— 90g/L_インヒビター ▲— 90g/L_改良剤

(c)

図 7-33 ケース A を除く各ケースにおける注入レート

(a) ケース B, C ($S_{TH} = 60\%$)

(b) ケース D, E ($S_{TH} = 80\%$)

(c) ケース F, G ($S_{TH} = 0\%$)

表 7-20 ケース別の実験結果一覧

| ケース | | A | B | C | D | E | F | G |
|-----------------------------|-----------------|-------|-------|------|-------|------|--------|--------|
| 初期 TH 飽和率 (%) | | 60 | 60 | 60 | 80 | 80 | 0 | 0 |
| 促進剤濃度 (g/L) | | 30 | 60 | 90 | 60 | 90 | 60 | 90 |
| 平均有効浸透率 mD | インヒビター注入前 | 347* | 347* | 347* | 47* | 47* | 4949.0 | 4949.0 |
| | インヒビターと薬液注入・養生後 | 745.1 | 475.5 | 計測不能 | 374.3 | 計測不能 | — | — |
| | TH 分解後 | 945.0 | 687.6 | 7.5 | 707.8 | 計測不能 | 347.5 | 5.5 |
| 平均乾燥密度 g/cm ³ | インヒビターと薬液注入・養生後 | 1.94 | 1.97 | 2.07 | 1.98 | 2.13 | — | — |
| | TH 分解後 | 1.82 | 1.94 | 2.06 | 1.93 | 2.13 | 2.00 | 2.06 |
| 平均一軸圧縮強度 (MPa) | | 3.92 | 5.28 | 5.84 | 6.08 | 8.95 | 6.50 | 6.07 |
| 備考 | | | | | | 切替延時 | 参照ケース | 参照ケース |

※：式 6-1 および図 6-4 による推定値

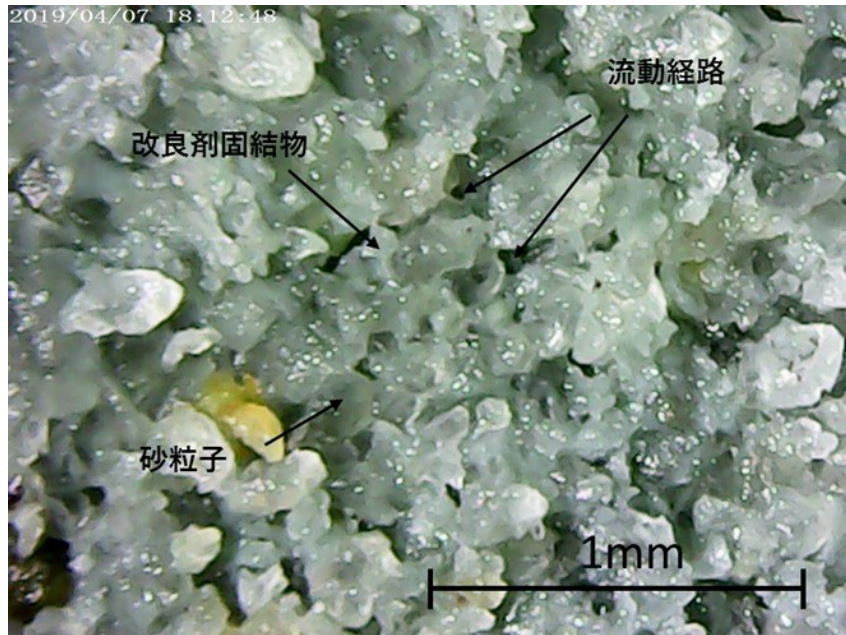


図 7-34 インヒビター・薬液注入後の供試体の顕微写真一例
(ケース D)

孔隙の大半は TH と改良剤で充填されたものの、
流体の通路の存在を確認できる

第 8 章 考察

本章では，本研究における実験設計，予備実験および本実験の結果に基づき，本手法の特徴や実際の MH 層に適用する際の注意事項や予期効果について考察する．

- 実験手法の開発について
- 本手法の適用性について
- 本手法の影響要素について
- 本手法の有望性について

8.1 実験手法の開発について

本研究では、MHより低圧で生成・維持できる模擬ハイドレート2種類：THおよびi-BHを用いて、MH層に地盤改良剤を注入する際の挙動を再現・解明するための実験装置1式を自ら設計・製作した。設計では、模擬ハイドレートの生成物質や注入薬剤を意識した耐薬品試験を行い、透明樹脂材料やグリース類を選定した。その結果、透明硬質塩化ビニール>アクリル（キャスト） \geq アクリル（押し出し）であることや、汎用ホワイトグリースに対するシリコングリースの優位性を確認でき、本研究のみならず、今後の実験設計にも大きく参考となった。その後、これらの実験装置を用い、前記模擬ハイドレート2種類の生成特性や浸透率特性を解明し、本研究における各実験を行うための手法と手順を確立した。

THは、砂の孔隙に充填するTBAB溶液の初期濃度を調整することで、高い飽和率のTH供試体を作製することができた。また、その飽和率-浸透率特性はMHの場合と比べ著しい差異が見られず、MH層の初期浸透率やそれによる薬剤の注入性等を模擬する用途では適切であることを確認した。さらに、その生成物質であるTBABは地盤改良剤の効果に影響が確認されなかったことから、本研究における薬剤の注入実験に相応しい代替ハイドレートであることが明らかになった。

一方、i-BHは、純度95%のイソブタンガスを用いて氷置換法（湿潤砂コア凍結通気法）により作製する際の生成特性を解明した。その結果、 -5°C でイソブタンの蒸気圧付近の条件においては、通気から約21~24時間後に水和反応が開始し、4日後にはi-BH薄層の厚さが約52~69 μm に達し、中心粒径 $d_{50}=128\mu\text{m}$ の7号珪砂による供試体では100%に近いi-BH生成率を達成できることを確認した。また、定量排水法により砂供試体内の残存水飽和率を制御することで、供試体のi-BH飽和率を計画値まで精密に調整することを実現した。ただし、計画i-BH飽和率が高い（ $S_{iBH'} > 40\%$ ）場合には、孔隙に残存する水/氷の飽和率が高く、すべての有効孔隙まで効率的にガスを通気することが困難になるため、i-BHを計画通りに100%生成させることが難しくなる。すなわち、供試体に高い

均質性が要求される場合には，実用的な最大 i-BH 飽和率が $S_{iBH} = 40\%$ 程度までと考えられる．なお，定量排水の具合と生成可能な最大 i-BH 飽和率の実験式は，供試体の軸方向（排水方向）における空気の圧入速度（cm/s）を制御パラメータとしているため，砂材料の粒径分布が同一であれば，円柱型供試体のみならず，2次元断面モデルや3次元水槽実験モデルなど，異なる形状やサイズを有する模擬砂試料にも適用可能と考えられる．

さらに，砂供試体を異なる温度域に移行する際の温度安定時間や，イソブタンガスを測定流体とする際の浸透率補正式を求めた．その結果，空気による有効浸透率はイソブタンによる見掛け浸透率の1.278倍であることが明らかになった．この係数は，本実験装置の構成（計測ユニット）に限り有効であるが，同型の計測機器を用いる今後の実験にも有効であると考えられる．

8.2 本手法の適用性について

本研究では、TH および i-BH 供試体にセメント系地盤改良剤を注入し、本手法の適用性を検証した。メーカー純正品のセメント系地盤改良剤は、東北硅砂 7 号 ($d_{50}=128.8\ \mu\text{m}$) により作製した $S_{TH} \leq 60\%$ の供試体に良好に注入できたが、 $S_{TH} \geq 70\%$ の場合は注入性が著しく低下した。また、TH の初期飽和率が高いほど、改良体の TH 分解前浸透率、強度とも低いことが明らかになった。そのため、 $S_{MH} \geq 80\%$ の濃集層を開発対象とする場合には、温水またはインヒビター等により前処理を行う (MH 飽和率を低下させておく) ことが必須であると考えられる。

インヒビターの注入には先行注入方式と同時注入方式の 2 パターンがあるが、先行注入方式の方が、薬剤の選定や注入タイミングと圧力の個別制御の自由度が高いほか、作業時間の短縮や改良体の性能向上の面においても優れることが確認された。また、インヒビターの注入レートから供試体の浸透率変化を推定できたことから、実際の操業では、この点を利用し MH 層の飽和率・浸透率の変化を推定し、改良剤の注入タイミングを決めることが可能である。

一方、インヒビター等による前処理では、MH の分解により孔隙に大量のガスの発生が予想される。そのため、 $S_{iBH} = 0 \sim 40\%$ の i-BH 供試体にインヒビターや改良剤を注入し、分解ガスの挙動および固結後の物性を確認した。その結果、i-BH の表面に生成した分解ガスは、i-BH と薬剤との接触を抑制し、浸透率の改善を妨げることを確認した。また、孔隙中に大量の分解ガスが発生したことで孔隙圧が上昇し、薬剤を注入するための圧力勾配が低下したため、TH 供試体による注入実験の場合と比べ供試体の浸透率の改善には非常に長い時間を要したなどの注入障害を引き起こした。さらに、このような障害は i-BH 飽和率が高いほど顕著になるため、分解ガスを伴わない TH 供試体の場合と比べ注入後の不均質を引き起こしやすい傾向も確認された。したがって、実際の操業では、インヒビターの先行注入に要する期間や注入の不均質性を考慮する必要があると考えられる。

また、薬剤の注入を停止した後にも、分解ガスの発生により孔隙

中の薬剤が一部排出される作用が確認された。ただ、1) 注入終了後のガス発生レートが低く、孔隙内におけるガス相の流動が極めて緩やかなため、水相への排出作用が限定的であった、2) 分解ガスによる薬剤の排出作用は十数時間にわたる比較的緩慢な挙動であったのに対し、改良剤粒子の凝集や水和反応が先に進み、孔隙に付着しセメント水和物へと成長し始めていたため、薬剤を100%排出することができず、相当数の改良剤粒子が孔隙に残ったことが分かった。さらに、改良剤の一部の水は排出されたものの、i-BHの分解で発生した水が改良剤の水和反応に供給したため、改良剤の固結効果に特段に大きな影響がなかった。実際、これらの供試体を7日養生した後に物性を計測した結果、i-BH分解後の有効浸透率 = 826mD、一軸圧縮強度 = 2.33MPa という物性値が得られたことから、高い飽和率を有するガスハイドレート層においても十分に適用可能であることが明らかになった。

8.3 本手法の影響要素について

本研究では、改良体の物性に影響を与え得る地層条件と操業条件について定量評価を行った。地層条件では、地層を構成する砂粒子が小さいほど改良剤の注入が困難になるが、少なくとも珪砂 8 号 ($d_{50} = 82.5 \mu\text{m}$) 以上の中心粒径を持つ地層であれば適用可能であることが分かった。また、初期地層水が注入剤により置換されるため、初期塩分濃度は改良体の物性に大きな影響を与えないことが分かった。さらに、初期ハイドレート (i-BH, MH) 飽和率が高いほど分解ガスによる注入障害が著しくなる一方、飽和率が 15~20%まで低下した後に初めて本格的に注入が可能になるため、薬剤の注入には長い時間を要するものの固結後の改良体の物性に大きな差異がなく、概ね水層の場合の約 2/3 の強度を実現できることが明らかになった。ほかに、地層温度、すなわち養生時の温度は、セメントの水和反応速度やその生成物の性状を大きく左右するため、改良体の物性に大きな影響を与えることを確認した。実際の操業では、MH 層の温度に留意しながら計画を立てる必要がある。例えば、MH 層の温度が数℃とされるアラスカ陸上鉱区の場合には、純正の改良剤のみでは強度発現を期待できないため、低温固結を促進する薬剤（促進剤等）の使用が必須と考えられる。ただ、いずれの温度域においても、時間が経つと共に供試体の浸透率が低下する一方で、一軸圧縮強度が向上していく傾向を確認した。低温域で促進剤を使用しない場合を除き、約 7 日間経過すれば安定した浸透率と十分な強度を得られることが示唆された。

一方、操業条件に関しては、地層に注入するインヒビターは濃度が高いほど分解促進効果が強くなるが、分解ガスによる注入妨害作用も著しくなるため、MH 層の浸透率を急激に向上させることが困難である。ただし、高濃度のインヒビターは、MH の分解で発生する水により希釈されにくく、また分解ガスによる薬剤の排出作用を受けても 100%排出されないため、一度に少量に注入すると継続的に効果を発揮できる。また、改良剤（主剤、配合剤、促進剤）は濃度が高いほど効果が強く、より低浸透ではあるものの高い強度を有する改良体を作製できることが明らかになった。この性質を利用し、

改良体の物性を広範囲で調整することが可能である。さらに、促進剤は、いずれの温度域においても養生期間を短縮させる効果があることから、工期の短縮、備船料および人件費の削減などに貢献できると考えられる。ただし、上記の改良剤は、初期の調製温度により後日の固化効果が大きく左右されるため、極地鉱区などの寒冷地においても常温(20~30℃)の調製液を使うことが必須である。また、高濃度の促進剤は改良剤粒子を凝集させ、地層への注入性を損なう副作用があることから、計画および使用時には慎重に検討する必要がある。

ほかには、MH層の浸透率の改善方式や、薬剤の注入停止タイミングによる影響についても検討した。その結果、インヒビターによる注入性の向上や、同時注入方式に対する先行注入方式の優位性が確認され、今後の研究においては、原則として、先行注入方式を採用することにした。また、改良剤の注入停止タイミングが早い、すなわち残存MH飽和率が高いほど、分解ガスによる薬剤への排出作用が著しく、改良体の強度低下幅が大きくなることが分かった。そのため、坑壁または地層の崩壊を起こさない限り、極力、計画注入範囲内のMHが完全に分解するまで注入を継続することが望ましい。その場合、注入フロント付近で発生する分解ガスにより多少改良剤が排出されるものの、概ね水層での試験値の2/3程度の強度を実現できる。なお、MH層の形成システムから、MH未充填の完全砂層(原始堆積物)状態でもある程度の安定性を有することから、改良剤が完全に固化するまでの間に減圧を行わない限り、孔壁の崩壊や砂の流出が生じる可能性が低いと考えられる。

以上の検討から、本手法により効率良く高い安定化効果を有する改良体を形成するためには、1) 高濃度のインヒビターを先行に注入し、MH層の飽和率を可能な限り低下させておくこと、2) 高濃度改良剤を常温または指定温度により配合し、凝集が生じないように速やかに地層に圧入すること、3) 計画注入範囲内のMHが完全に分解するまで注入を継続すること、が肝要である。

8.4 本手法の有望性について

本手法のポテンシャルを探るためのケーススタディでは、 $T=3^{\circ}\text{C}$ 、 $S_{TH}=60\%$ 、80%の地層を想定し、先行注入方式により注入実験を行った。その結果、いずれの初期 TH 飽和率でも、薬液注入・養生後の浸透率 $> 374\text{mD}$ 、TH 分解後の浸透率 $> 687\text{mD}$ 、一軸圧縮強度 $> 5.28\text{MPa}$ の改良体を形成できた。これらの強度値は、セメント系改良剤が不得意な低温域で得られたものであり、実際の MH 層の場合はさらに高い強度を達成できると考えられる。また、注入・養生後の浸透率が注入前の初期値よりも高く、TH 分解前後の乾燥密度に大差がないことから、インヒビターにより TH 飽和率を低下させたことを裏づけている。以上のことから、本手法による改良体は浸透性と強度の維持の両立を十分実現したことを明示している。一方、改良剤の凝集と目詰りといった副作用から、改良剤の濃度を無制限に上げることができないが、それを生かして水層への止水等の役割を果たすことも可能である。

なお、上記の検討は、あくまでも現時点の知見を反映したものである。また、実際の操業では、MH 層にある粘土鉱物、地層の圧力条件、掘削泥水との相性等も考慮しなければならない。さらに、地層流体による流動侵食や、改良剤固結物との化学的な作用等により改良体に劣化が生じる可能性も否定できない。そのため、今後は実際の MH 層の圧力条件での注入・固結実験や、動的な流体生産条件における改良体の耐久性評価を実施することも視野に入れる。

第 9 章 まとめ

本章では，本研究のまとめおよび今後の展望について述べる．

- 本研究のまとめ
- 本手法に係る課題および今後の展望

9.1 本研究のまとめ

本研究では、MH およびその貯留層の性質を踏まえ、地盤改良剤または自己硬化性粒子を用いて MH 生産時の出砂問題を解決する手法を提案した。同手法は、1) MH 層を構成する砂粒子の孔隙に地盤改良剤を注入し、砂粒子を人工的に固結すること、または 2) 坑井のケーシングの外周と MH 層との間に発生した空洞に自己硬化性の粒子 (RCS 等) を充填・固結させることで、坑井周辺の MH 層に浸透性と強度を両立した多孔質改良体を形成し、圧密や出砂を防止しつつ、水やガスの長期安定生産を実現させる。同手法は、2018 年 6 月の優先権付きで国際 (PCT) 出願をし、本研究の論文を執筆する時点において日本、米国で特許を取得している。

この手法の有効性を確認するためには、MH より低圧で生成・維持できる模擬ハイドレート 2 種類：TH と i-BH を用いて検証実験を行った。実験を行うためには、常圧実験装置 4 基、低圧実験装置 2 基、およびその補機類 1 式を自ら設計・作製した。また、これらの実験装置を用いて、模擬ハイドレートの生成特性を解明し、飽和率 $S_{i-BH} = 0\% \sim 40\%$ および $S_{TH} = 40\% \sim 80\%$ の模擬ハイドレート供試体の量産化に成功した。

続いて、これらの実験装置を用いて、前記模擬ハイドレート供試体に地盤改良剤を注入した。その結果、飽和率 60% 以下の TH 層、または飽和率 15% 以下のガスハイドレート (i-BH) 層に良好に注入でき、浸透性と強度を両立した改良体を形成した。また、これより飽和率が高い場合にも、インヒビター等を用いた前処理により浸透率を向上させ、少なくとも飽和率 80% まで対応できることを確認した。さらに、薬剤の注入に伴う分解ガスの発生により、薬剤への注入障害や排出作用が確認されたが、同条件における水層での試験値の約 2/3 程度の強度を得られたことから、本手法を実際の MH 層にも適用可能と考えられる。

その後、本手法による MH 層の安定化効果への影響要素について検討した。その結果、地層の砂粒子が (薬剤を注入可能な範囲で) 細かいほど、地層温度が高いほど、または薬剤の各成分の濃度が高く、かつ養生時間が長いほど、低浸透・高強度の改良体を作製できるこ

とが分かった。一方、MH層の塩分濃度は、孔隙水が薬剤により置き換えられるため、明確な影響がないと考えられる。さらに、もっとも大事な初期MH飽和率については、 $0\% \leq S_{MH} < (15 \sim 20)\%$ の範囲において飽和率が高いほど改良体の強度が弱くなる傾向ではあるが、実際の開発対象となるMH層の場合は $S_{MH} = 60 \sim 80\%$ であるため、改良体の性能の面においては実質的な影響を受けないと考えられる。むしろ、初期MH飽和率よりも、改良剤の注入停止後の残存MH飽和率の方が薬剤の排出作用の強弱を左右し、改良体の物性に著しい影響を与えることになる。ただ、高飽和率のMH層の場合は分解ガスの影響により薬剤の注入に長い時間を要するため、実際のフィールド操業では要考慮である。特に、セメント系改良剤は、静止状態または微速流動状態において時間が経つにつれて凝集する性質を有するため、実際の操業計画では、改良剤の待機時間を極力短縮するよう、凝集性がないインヒビターにより貯留層のMH飽和率を10%~15%程度までと十分に低下させてから改良剤を注入すると良いと考えられる。

一方、分解ガスによる影響を受けた場合は、水層またはMHが完全に分解した砂層の場合と比べ、局所流動（ワームホール）により固結後の物性に不均質が生じやすい傾向が明らかになった。実際のフィールド操業では、このような未改良または改良が弱い（浸透率が高い）箇所には流動が集中し、内部浸食により出砂につながる可能性を否定できない。そのため、アップスケールした注入実験により、分解ガスによる不均質の発生特性の解明やその対策の検討を行い、本手法の補完を目指したい。

9.2 本手法に係る課題および今後の展望

本研究は、地盤改良剤によるMH層の安定化の手法を提案し、その適用性やポテンシャルを検証したが、実用化させるためには以下の課題を解決する必要がある。

<改良体の不均質及び異方性の解明>

本研究では、地層水、分解ガスおよび注入薬剤の密度差や分解ガ

スの挙動などから、ワームホール現象すなわち改良体の不均質の発生を確認している。また、粒子系改良剤を使用する場合は、その流動特性や粒子の凝集・沈降により、浸透拡散の方向に対する3成分の異方性も予想されている。このような現象は、数値シミュレーションの結果の正確性に大きな影響が出るほか、実際のフィールドにおける貯留層の安定化効果にも影響を与えることから、その影響や回避策を検討する必要がある。(1年以内)

<適用限界の検討>

坑井からの注入した薬剤は円筒状に拡散・浸透するため、注入フロントの拡大に伴い流速が低下する。しかし、地盤改良剤を中心とした薬剤は、流速が低下または静置になると粒子の凝集が始まる性質があるため、注入半径には限度があると予想される。また、粒子の目詰まりにより坑井付近の浸透率が低下し、薬剤の注入性が低下するケースも予想されるため、薬剤の性質やMH層の地質条件から最大注入半径を推定する手法を確立させたい。(1年以内)

<改良剤を活用した止水手法>

過去のMH産出試験では、帯水層への導通により坑内ポンプの能力以上に大量の出水が発生し、減圧を維持できなくなる事象が起こった。すなわち、MHの安定生産を実現させるためには、出砂だけでなく、このような望まぬ出水をも止める必要がある。一方、本研究で扱っている地盤改良剤は、MH層の強度を向上させるだけでなく、成分や配合比を調整することで改良体の浸透率を広い範囲で調整・低下させることができるため、この点を生かし、帯水層の止水対策としての有効性を検討したい。(1年以内)

<インヒビターの注入性／前処理手法の最適化>

本研究では、インヒビターを用いて貯留層の浸透率を向上させる先行注入法(前処理)を提案し、その著しい効果をコア注入実験により検証した。しかし、恒温水槽の中で行われるコア実験と比べ、MH層の場合は上下または周辺の地層から十分な熱を供給できず、

高濃度のインヒビターを注入しても思うように分解させない可能性がある。そのため、前処理手法として提案された温水投入法や、両者の組み合わせを検討する必要がある。(1~2年以内)

<目詰まりによる浸透率の低下>

地層水および分解ガスの生産に伴い、未固結の細粒分が坑井に向かって移動・集積するため、坑井付近に目詰まりが発生する可能性がある。実際の第2回海洋産出試験では、出砂対策装置「GeoFORM™」の浸透率が50mDから1mD程度まで急低下したことが確認され、未固結貯留層における細粒分の移動がMHの安定生産に大きな影響を与えることが明らかになった。一方、本研究で使用する地盤改良剤は、地層粒子を人工的に固結する薬剤であるため、それを活用した細粒分の固定化、すなわち生産条件における浸透率の低下具合を評価したい。(1~2年以内)

<空洞対策>

未固結砂層は掘削時に坑壁が崩壊しやすい特性を有することから、坑径の拡大が生じやすい傾向がある。この場合、ケーシングと地層の間に大きな空洞が生じるため、ダブルパッカーによる特定の地層への選択的注入が困難になるほか、帯水層との導通や異常出水が発生するリスクが高まる。また、坑内膨張式の出砂対策装置「GeoFORM™」を投入しても、坑径により対応し切れないことも十分予想される。さらに、改良体の経年・浸食劣化により砂が流出した場合は、その補修として空洞を充填する必要性が生じる。そのため、本研究における提案手法の第2の案、すなわち自己固化性の粒子状充填材(RCS等)により空洞を充填させ、浸透性と強度ともに優れた充填体(再改良体)を作成する手法を検討したい。(2~3年以内)

<改良体強度の十分さ>

本研究では、孔隙率=38%かつ常圧条件において、一軸圧縮強度=6.08MPaの供試体の作成に成功した。一方、過去のMH産出試

験では、孔隙圧 = 13MPa であった貯留層を 3MPa まで減圧させたため、有効応力の上昇幅は 10MPa にも達したと推測される。すなわち、実際のフィールド条件（孔隙率、拘束圧）において同じ操業条件により作製できる改良体の強度値や、それが出砂をどの程度防ぐことができるかについては、高圧三軸圧縮試験または数値シミュレーションにより解明する必要がある。（2～3 年以内）

< 改良体の耐久性 >

地盤改良剤による一般的な土砂固化改良体は、強度面での寿命が坑井の供用期間より遥かに長いとされるが、強減圧による MH 生産の場合は、地層水と分解ガスからなる多相流体による内部浸食が予想されるため、この条件における坑壁の経時安定性の評価が必要とされる。この評価には、主に私の実験装置（特開 2021-116520）を用いて実施する予定である。（2～3 年以内）

< 実験装置の高圧化および低圧実験値との換算手法の確立 >

これまでの研究は、実験室で比較的实现しやすい低圧条件において代替ハイドレートを用いて行ったが、実際の地層条件（粒径、孔隙率、拘束圧等）では、薬剤の圧入挙動や改良体の物性が異なることが予想される。そのため、実際の MH 層の圧力条件を再現した状態で定量物性実験を行い、実験室条件で容易に取得する低圧供試体の実験データから実際の貯留層条件における改良体の物性を推定または予測する手法を確立したい。（2～4 年以内）

< 数値シミュレーションなど、研究手法の拡張 >

本研究は、室内実験を中心に行ってきたが、モデルの高圧化・大型化に伴い、機械の重量増、スペースの制約、有資格者の人手不足、および一人での夜間作業による長時間拘束や安全上の問題が表面化している。そのため、今後の研究では、室内実験のみならず、差分法・有限差分法を利用した数値シミュレーションにより、本手法による地層安定化効果や長期生産時の流体・岩盤の挙動を効率よく予測・検討したい。また、統計的手法や機械学習・人工知能（AI）

を取り入れることで、1) 本来大量の実験を必要とするテーブルデータを効率よく取得でき、かつ 2) フィールド条件に合わせた最適な操業条件を提案し、3) その安定化効果を自動的に予測できることを目指したい。(2～5年にかけて)

< 注入ツールの開発 >

本手法を実際のフィールドに適用させるためには、注入ツールを開発しなければならない。そのため、今後の研究では、1) 削井ツールやケーシングの規格、2) 前処理の方式、3) 改良剤の性質、および 4) 分解ガスによる薬剤の注入障害や排出作用といった挙動特性を意識し、石油・ガス井または表層地盤改良向けの既存の注入ツールをベースに、MH層安定化のための専用の注入ツールを開発したい。なお、これらのツールを含む操業設備の開発は、国内の研究機関や民間企業（石油開発会社・サービス会社、メーカー）等と連携し、研究リソースやノウハウを共有し合うことで、効率よく推進したいと考えている。(3～5年程度)

< 実証試験への参加 >

フィールド条件での予期効果や現場の操業設備・ツールを完成したうえ、国内外の実際のフィールド産出試験に参加し、本手法の有効性（出砂・出水の防止、MH貯留層からのガス安定生産への貢献）を検証したい。(3～5年程度)

< 業界標準化 >

本手法は、既存の生産設備の最大限に活用できる利点や、坑井周辺の未固結地層そのものを十分な浸透率と高い強度を有する人工砂岩に改良する特徴から、現時点において MH層の出砂や坑壁崩壊を防ぐ最も有望な手法の一つと考えられる。今後、実際のフィールド産出試験において実績を積み上げ、日米の資源開発業界で標準化を行うことで、日本発の MH生産技術として海外に売り込むことも視野に入れている。(5～10年程度)

上記の課題は、その関連性や実験の条件等を勘案し、今後数年～十数年程度をかけて以下の計画に沿って着実に進めたい（表 9-1）。いずれにしても、まだ開発途上にある本 MH 層安定化手法ではあるが、砂層型 MH の開発と安定生産に貢献できれば幸甚である。

表 9-1 地盤改良剤による MH 層安定化手法の中長期研究計画

| 年度 | 2023 | 2024 | 2025 | 2026 | 2027 | 2028 | 2029 | 2030 | 2031 | 2032 | |
|----|--------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|--|
| 課題 | 不均質/異方性 | | | | | | | | | | |
| | 適用限界 | | | | | | | | | | |
| | 止水対策 | | | | | | | | | | |
| | 前処理手法の最適化 | | | | | | | | | | |
| | 目詰まり対策 | | | | | | | | | | |
| | 空洞対策 | | | | | | | | | | |
| | 改良体の耐久性 | | | | | | | | | | |
| | 改良体強度検討 | | | | | | | | | | |
| | フィールド値との換算手法 | | | | | | | | | | |
| | 研究手法の拡張 | | | | | | | | | | |
| | 注入ツールの開発 | | | | | | | | | | |
| | 実証試験への参加 | | | | | | | | | | |
| | その都度の課題解決 | | | | | | | | | | |
| | 業界標準化 | | | | | | | | | | |

謝辞

1 大学関係者

まず、指導教官である栗原先生に深く感謝申し上げます。2017年3月に博士学生として受け入れの承諾を頂き、2018年4月より本格的に研究を始めた以来、研究の立案や指導のほか、特許の共同出願、奨学金の申請、論文添削などで大変お世話になりました。また、個人的な悩み相談にも親切に応じて頂き、私の勉学だけでなく、生活面においても心強くサポートして頂きました。さらに、学科の助手にご推薦頂いたおかげで、私の生活・経済面だけでなく、授業や学生指導を通じて教員としての心構えを身に付けました。これは、将来のアカデミック・キャリアないし今後の人生にとって大変有り難く存じております。この5年間の専門知識や経験を活かし、先生のご入院中の業務対応について全力を尽くしますので、ご安心にご静養頂き、一日も早く回復することを心よりお祈り申し上げます。

次に、副指導教官である古井先生に感謝申し上げます。ご多忙の中、実験装置の借用や使い方の指導などご親切にご対応頂き、また、私の学術論文を石油技術協会賞にご推薦頂き、ありがとうございました。さらに、栗原先生の健康上、研究室の運営に支障が出た際に、先生のご家族との連絡役や業務対応の取りまとめ役となり、当研究室の卒業・修士論文の指導などで心強くサポート頂きました。おかげ様で、私の業務負担を大きく軽減でき、より余裕をもって対応できるようになりました。心より感謝申し上げます。

また、本研究論文の副査である上田先生、大内先生に感謝申し上げます。両先生からは、論文の修正・仕上げのための貴重なご意見を頂いたほか、実際のMH開発現場における諸問題をお教え頂き、今後の研究課題の設定ないし本手法の更なる発展に大変有難い参考となりました。

そして、研究室秘書の山岡様及び歴代秘書の方々に感謝申し上げます。実験装置を作る材料と部品の調達・精算のほか、栗原先生との日程調整や連絡などで大変お世話になりました。特に山岡様は、栗原先生のご入院中、先生ご本人との連絡役を務めており、研究室

の安定した運営に大きく貢献されました。おかげさまで、私の業務負担を大きく軽減でき、より余裕をもって対応できるようになりました。心より感謝申し上げます。

さらに、MH 実験グループの李（イキン）さんに感謝申し上げます。李さんは、2019年3月から私の実験に参加し、実験材料の用意や器具の洗浄から、一部のデータ計測と解析まで分担して頂きました。おかげ様で、本研究の実験（THを用いた部分）を無事に終了致しました。また、李さんは私が指導した学生の第1号でもあり、（国籍は同じではあるものの）文化が異なる若い女子学生との接し方や指導方法について色々と学ばせて頂きました。これは、今後のアカデミック・キャリアにとって大変有益な経験であり、心より御礼申し上げます。ENEOSでのご活躍をお祈り致します。

ほかに、大学職員である伊東様・田辺様（学科実験室）、山崎様、吉田様（学科事務室）、松山様・牛山様（TLO）、および材料実験室、技術総務課、教学支援課等の職員の方々に感謝を申し上げます。特に伊東様は、実験資機材の受取代行や実験時の技術サポートだけでなく、実験関係者での飲み会を開催するほか、個人の悩み相談にも親切に応じて頂き、私の研究生活にとって大変有り難い存在でした。また、TLOの松山様と後任者の牛山様は、本研究に係る基幹特許の共同出願について多くのサポートを頂き、心より感謝申し上げます。

最後に、既設の実験装置の使い方をお教え頂いた栗原研、古井研のOB・OG、ご不要（廃棄処分）になった旧型の実験装置をお譲り頂いた上田研、旧村田研の（代行）教員、学生達に感謝を申し上げます。おかげ様で、より効率的、かつ経済的に研究環境を構築できました。また、一緒に研究生活を送ってきた栗原研の現役の学生諸君や、担当授業で指導した学部の学生諸君にも感謝申し上げます。おかげさまで、この5年間（助手としては3年間）大きく成長できました。

2 親族

まず、石油関係の大学教員であった亡父（作井・坑井改修・注入

剤分野)と、元国営石油会社幹部であった母(地質学、岩盤工学・油層工学分野)に深く感謝申し上げます。子供の頃からは、度々両親に職場まで連れて行かれ、石油・天然ガスの探査、開発、生産の現場を馴染んできました。これは、私が石油工学の道を歩くことになったきっかけであり、本研究のアイデアの考案や実験の実施にも大きく寄与しました。また母には、私が助手就任後に会社の運営を委ねたほか、一部の実験用添加剤のご提供を頂きました。おかげさまで、本研究及びその関連技術の開発に集中できるようになり、大変助かりました。

次に、同じく石油関係(機械・施設分野)の教授である叔父から油田化学、生産施設(プラント)、材料工学の知識を学び、また機械工学技術者であった／である(母親側の)亡き祖父と伯父2人から機械設計、加工、製造の知識と技能を身に付けました。そのおかげで、本研究で使用した実験装置6機とそのモジュール、キット、補機類など数十点を自ら設計、製作できました。このような家庭環境が、本研究の基礎となるアイデアの誕生や、それに基づいた各研究の企画と実行に大きく寄与したので、心より感謝申し上げます。

3 法人団体

本研究は、私が早稲田大学での博士研究であり、博士後期課程若手研究者養成奨学金3年分のほか、特定課題研究助成費(課題番号:2020C-621, 2021C-154 2021E-017)を受けています。また、本研究の一部は、公益財団法人新井科学技術振興財団:令和2年度研究助成金(特別)による助成を受けています。そして、本研究における実験では、E & P国際商事株式会社から一部の資材道具の提供を受けたほか、実験装置の製作においては同社が所有する工場と工作機械を利用しました。さらに、本研究に係る学会発表や学術論文の審査・受理については、石油技術協会に大変お世話になっております。ここにて、上記の大学・企業・団体に深く御礼を申し上げます。

4 その他本研究に寄与してくれた方々

まず、知識を保留なくお教え頂いた学生時代の恩師方に感謝申し

上げます。特に、中学～高校時代の物理、化学の先生からは、学校資産の入れ替わりの際に廃棄になった実験装置と薬品を大量に譲って頂いた^{※1}おかげで、若いうちに実験の技能と経験を積むことができ、本研究における実験の設計、計画、作業、測定などに大きく寄与しました。

次に、石油分野の専門知識をお教え頂いた大学時代の先生方に感謝を申し上げます。本研究では、油層工学や岩盤力学の知識だけでなく、研究立案や実験条件の設定の段階においては、堆積学、鉱物岩石学、石油（MH）システム工学、掘削工学、地球物理学（探査・検層）、材料工学など、様々な知識とその組み合わせを参考にしました。また、操業条件の想定（設定）も、実際の油田での実習現場を意識したものでした。これらの貴重な知識と経験をお教え頂いた十数人の先生方に心より御礼申し上げます。

また、修士学生時代の恩師である東京工業大学の山中先生に感謝申し上げます。修士時代は、フルウェーブ・インバージョン（全波形逆解析）を専門としており、地盤改良後の表層地盤を対象にS波速度構造を解析する手法を開発しました。その際に得られた知見を基に本研究の地盤改良剤の種類を選定し、また特定の周波数を利用した供試体の量産化装置を作製できました。さらに、「分からないことを勝手に言うな」という研究者としての心構えをお教え頂き、今までないし今後のアカデミック・キャリアにおいて座右の銘になっています。山中先生も、ご年配になりつつありますので、くれぐれもご自愛のほどお願い申し上げます。

そして、前職（応用地質株式会社）の元上司・同僚達に感謝を申し上げます。おかげさまで、本研究におけるコア実験や物理計測等に所要する知識や技能を身につけ、本研究の成功に大きく寄与した。また、過酷な現場で長時間に拘束され、かつ責任者として瞬時的な判断を求められるなど、体力面、精神面で鍛え込まれたおかげで、最大17.5時間の連続実験にも耐えることができました。このような貴重な経験に感謝致します。

さらに、上記のストレスの相談に耳を貸してくれ、人生のアドバイスを頂いた友人の山下君、野寄君、中村君に感謝申し上げます。

す。おかげさまで、早稲田大学の博士課程に入学し、興味のある MH の研究に力を尽くすことを決断したのです。これは、私の人生を大きく変えただけでなく、(本研究の MH 層安定化手法が実用化した場合に)日本のエネルギー自給率をも大きく向上させるかもしれません。ここに深く感謝申し上げます。

ほかに、不用品交換・処分サイトであるジモティーのユーザー 41 人からも多くの資機材をご提供頂き、実験環境の構築と向上に大きく寄与された。おかげさまで、限られた予算で様々な試行錯誤をし、本研究の成果をあげることができました。ここに深く御礼申し上げます。

最後に、この分野のライバルである各国の MH 研究チームに感謝申し上げます。特に、本研究と類似点を持ち^{※2}、実用化に向けた進捗も早いとされる中国の研究チームの動きから強く危機感を持ったため、止まらずに、諦めずにチャレンジを続けてきました。今後とも、相手を尊重しつつ、MH の開発競争で有利になるように頑張っていきたいと存じます。

※1：当時の法令および規則上、差支えないものに限る。

※2：対象地層の性状および技術的特徴からは、本研究の新規性と進歩性（すなわち特許性）に影響がないとされる。

参考文献

以下には,本研究における参考文献を示す.和文文献は五十音順,英文文献はアルファベット順,中国語文献は漢語拼音順に並べる.

井田博之・幸田和郎, 2004: 天然ガスハイドレート (NGH) 高速製造技術, JFE 技報 No. 6, 76-80.

生越英雅・高雄信吾, 2004: 水和物スラリーを用いた省エネルギー空調システム, JFE 技報, 2004 年 (3), 1-5.

熊野寛之・斎藤彬夫・大河誠司・後藤裕介, 2006: TBAB 水和物スラリーの基礎特性に関する研究, 日本機械学会論文集 (B 編), 72 (724), 273-279.

熊野寛之, 2017: TBAB 水和物スラリーの流動と伝熱特性, JSME TED Newsletter, 82, 7-12.

栗原正典・佐藤明彦・大内久尚・大淵有希子・増田昌敬・成田英夫・海老沼孝郎・佐伯龍男・藤井哲哉, 2009: 東部南海トラフメタンハイドレート資源の生産性評価, 石油技術協会誌, 74 (4), 311-324.

経済産業省, 2001: 我が国におけるメタンハイドレート開発計画, メタンハイドレート開発検討委員会報告書.

建設省, 1974: 薬液注入工法による建設工事の施工に関する通達及び暫定指針, 建設省官技発第 160 号.

高圧ガス保安協会: 8.高圧ガス設備及び導管の強度, 高圧ガス保安法令関係例示基準資料集, 18.

高圧ガス保安協会: 特定設備検査規則例示基準集 (別添 1), 第 7 条.

佐々木直栄・小川清, 2013: 臭化テトラ-n-ブチルアンモニウム (TBAB) 水溶液の基本的性質 (第 1 報) 屈折率, 密度および粘性率, 日本冷凍空調学会論文集, 30 (2), 141-146.

杉本昭壽, 2005: ガスハイドレートからのガス回収方法および回収装置並びにガスハイドレートの再ガス化方法, 日本国特許庁, 特開 2006-052395

- 杉本昭壽，2018：プレッシャ誘爆熱衝撃波伝導体を用いた資源収集システム，日本国特許庁，特開 2019-214880.
- 鈴木俊也・桑野玲子，2016：メタンハイドレート採掘におけるグラベルパックを用いた出砂対策に関する基礎的検討，生産研究，68（4），311-314.
- 鈴木清史・成田英夫，2010：南海トラフメタンハイドレート堆積層の浸透率の推定—コア浸透率と検層結果比較，石油技術協会誌，75（1），98-105.
- 高山慶介，2017：模擬メタンハイドレートコアを用いた強度測定実験と均質コア作製法の提唱，早稲田大学卒業論文.
- 田中彰一，2009：我が国におけるメタンハイドレート開発計画の経緯とフェーズ 1 の成果—特集号発刊に寄せて—，石油技術協会誌，74（4），265-269.
- 独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構，2012：アラスカ CO₂ 置換ガス回収実証プロジェクトの現地試験終了-世界初のフィールド CO₂/CH₄ 置換試験-，NEWS RELEASE（JOGMEC の公式広報）.
- 独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構，2021：メタンハイドレート資源開発の実現に向けた新技術を開発-新しいコンセプト技術による特許を取得-，NEWS RELEASE（JOGMEC の公式広報）.
- 土木学会，2002：JIS A 1107-1993 コンクリートからのコアの採取方法及びコア供試体の圧縮強度試験の方法，コンクリート標準示方書 [規準編]，296
- 中村 雅洋，後藤 三郎，野沢 壮禎，石田 浩三，2009：メタンハイドレートの分解促進およびメタンガス採取システム，日本国特許庁，特開 WO/2009/016948.
- 成田英夫，2010：メタンハイドレート，MH21 研究開発コンソーシアム（当時）HP 公開資料.
- 西尾伸也・荻迫栄治・傳田篤，2009：東部南海トラフ海底地盤から採取したコア試料の地盤工学的性質，地学雑誌，118（5），955-968.

- 日本建設機械化協会，2004：除雪・防雪ハンドブック 2005（除雪編），第8章：路面凍結対策，192-216.
- 畠俊郎・高橋裕里香・西田洋巳・安田尚登，2017：日本近海のメタンハイドレート胚胎層から単離した微生物を用いた土の強度増進効果に関する実験的検討，12（1），151-160.
- 早野市郎・内田隆，1963：イソブタン水和物の生成に関する二，三の観察とその熱力学的特性，工業化学雑誌，67（7），997-999
- 早野市郎・内田隆，1969：プロパンー正ブタンー水系の水和物の生成平衡について，日本海水学会誌，22（5），355-359.
- 藤井哲哉・佐伯龍男・小林稔明・稲盛隆穂・林雅雄・高野修・高山徳次郎・川崎達治・長久保定雄・中水勝・横井研一，2009：確率論的手法による東部南海トラフのメタンハイドレート資源量評価，地学雑誌，118（5），814-834.
- 皆川秀紀・成田英夫，2009：メタンハイドレート分解方法及び装置，日本国特許庁，特開 2011-012451.
- メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・長尾二郎，2015：メタンハイドレート生産回収増進法の開発，メタンハイドレートフォーラム 2015，東京.
- メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム・山本晃司，2017：第2回海洋産出試験について，メタンハイドレートフォーラム 2017，東京.
- 安田優人・Scott R. Dallimore・MH21メタンハイドレート資源開発研究コンソーシアム；タスクフォース産出試験計画，2007：メタンハイドレート第二回陸上産出試験（2007年）の報告，石油技術協会誌，72（6），603-607.
- 安田優人，2008：第2回陸上産出試験の概要ーカナダマッケンジーデルタの話，MH21研究開発コンソーシアム（当時）HP公開資料.
- 山本晃司，2009：メタンハイドレートの生産手法とフィールド産出試験，地学雑誌，118（5），913-934.
- 山本晃司・佐伯龍男，2009：メタンハイドレート資源量評価と陸上産出試験，石油技術協会誌，74（4），270-279

- 山本晃司, 2010: メタンハイドレート資源の開発方法, *International Symposium on Methane Hydrate Resources / From Mallik to the Nankai Trough*, 東京.
- 山本晃司・藤井哲哉・長尾二郎・中塚 善博, 2013: メタンハイドレート: 第1回海洋産出試験, *メタンハイドレートフォーラム 2013*, 東京.
- 山本晃司・米田純・MH21 ワーキンググループ, 2014: 地層の力学応答 - 地層の安定性と出砂のメカニズム, *メタンハイドレートフォーラム 2014*, 東京.
- 劉雨晨, 2018: Fiery Ice 2018 参加報告, 学内の海外出張報告.
- 劉雨晨・栗原正典, 2018: 地層改良を用いたメタンハイドレートの生産方法, WIPO 国際事務局, 特開 WO/2020/003551 / 日本特許第 7170725 号, 米国特許 US 11,492,884 B2.
- 劉雨晨・栗原正典, 2019: ガスハイドレート層への薬剤注入効果及び安定化効果の向上方法, WIPO 国際事務局, 特開 WO/2020/250893.
- 劉雨晨・山中浩明, 2015: 人工加振波形の逆解析による地盤改良効果の評価, 東京工業大学大学院修士論文
- 劉雨晨・レイキン, 栗原正典, 地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化の研究. *石油技術協会誌*, 85 (4・5), 205-225.
- Abe Y., Kestin J., Khalifa H. E., Wakeham W. A., 1979: The viscosity of normal butane, isobutane and their mixtures, *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 97 (2), 296-305.
- Anders Palmén, Graham Price, Morgan Axelsson, & Stefan Larsson, 2015: Low-temperature calcite precipitation in sand using CIPS, *Ground Improvement*, 169 (1), 36-41.
- Asaoka, T., Kumano, H. & Serita, M., 2013: Measurement of latent heat of tetra-n-butylammonium bromide (TBAB) hydrate, *International Journal of Refrigeration*, 36 (3), 992-997.
- Gas Encyclopedia website by Air Liquide : 030-Isobutane,

- <https://encyclopedia.airliquide.com/isobutane>.
- Heng-Joo NG & D.B.Robinson, 1976: The Role of n-Butane in Hydrate Formation, *AIChE Journal*, 22 (4), 656-661.
- Masuda, Y., Naganawa, S., Ando, S., & Sato, K., 1997: Numerical calculation of gas-production performance from reservoirs containing natural gas hydrates, *SPE Asia Pacific Oil & Gas Conference & Exhibition*, held in Kuala Lumpur, Malaysia, 14-16 April, SPE 38291.
- Oyama, H., Shimada, W., Ebinuma, T., Kamata, Y., Takeya, S., Uchida, T., Nagao, J., & Narita, H., 2005: Phase diagram, latent heat, and specific heat of TBAB semiclathrate hydrate crystals, *Fluid Phase Equilibria*, 234, 131-135.
- V.M. Buleiko, B.A. Grigoriev, J. Mendoza, 2018 : Calorimetric investigation of hydrates of pure isobutane and iso- and normal butane mixtures, *Fluid Phase Equilib*, 462, 14-24.
- 陈多福·徐文华·赵振华, 2001: 天然气水合物的晶体结构及水合系数和比重, *矿物学报*, 21 (2).
- 李怀文·孙涛·王超·刘伟·曹庆平·许泽涟, 2016: 超低温新型树脂涂敷砂及人工井壁防砂技术, *石油学报*, 37(2), 112-116(-149)
- 孙友宏·马晓龙·郭威·李冰·贾瑞·曲莉莉·王秋雯, 2018: 泡沫注浆法改造海洋泥质粉砂型天然气水合物储层的方法, 中华人民共和国国家知识产权局, 发明专利 CN108180001B.

早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏名： 劉 雨晨

印

(2023年 6月 29日現在)

| 種類別 | 題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む） |
|--------------|---|
| ※ | 博士論文に直接関係のある研究業績一覧 |
| ○論文 (査読付) | インブタンハイドレートコアを用いた注入実験システムの開発と地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化における分解ガスの挙動の解明、石油技術協会誌、88(2)、105-122、劉雨晨、伊東克己、栗原正典 |
| ○論文 (査読付) | 地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化の研究、石油技術協会誌、85(4・5)、205-225、2020年9月、劉雨晨、リイキン、栗原正典 |
| 総説/MISC | Development of Numerical Simulator Predicting Methane Hydrate Dissociation and Production Behavior in Using Grout Material, SPWLA 27th Formation Evaluation Symposium of Japan, 1-10, Sep.2022, Kyohei Matsuka, Yuchen Liu, Masanori Kurihara |
| 講演 | Development of numerical simulator predicting methane hydrate dissociation and production behavior in using grout material, The 27th Formation Evaluation Symposium of Japan, Tokyo, Sep.2022, Kyohei Matsuka, Yuchen Liu, Masanori Kurihara |
| ○講演 | 地盤改良剤によるメタンハイドレート層安定化の検証のためのインブタンハイドレートコアを用いた実験システムの開発と運用、令和4年度石油技術協会春季講演会、東京、2022年6月、劉雨晨、伊東克己、栗原正典 |
| 講演 | 地盤改良剤を用いたメタンハイドレート分解・生産挙動の予測シミュレータの開発、令和3年度石油技術協会春季講演会、東京、2021年6月、松家京平、劉雨晨、リイキン、栗原正典 |
| ○講演 | 地盤改良剤によるハイドレート層の安定化実験、令和元年度石油技術協会春季講演会、東京、2019年6月、劉雨晨、リイキン、栗原正典 |
| 特許 | 流体浸透条件における改良体または多孔質岩盤の耐久性評価方法と装置、特開2021-116520、日本国特許庁、2020年1月、劉雨晨 |
| 特許 | ガスエマルジョンによるガスハイドレート供試体の作製方法、特開2021-050568、日本国特許庁、2019年9月、劉雨晨、栗原正典 |
| ○特許 | ガスハイドレート層への薬剤注入効果及び安定化効果の向上方法、特開WO/2020/250893、日本国特許庁(PCT)、2019年6月、劉雨晨、栗原正典 |
| ○特許 | 地層改良を用いたメタンハイドレートの生産方法、特開WO/2020/003551、日本国特許庁(PCT)／日本国特許第7170725号・米国特許US 11,492,884 B2、2018年5月、劉雨晨、栗原正典 |
| 作品 | 【地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化実験】地盤改良剤による不均質注入および改良体の物性の不均質と異方性を解明するための2次元加圧注入5号機、2023年2月～現在、劉雨晨 |
| 作品 | 【地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化実験】コア加圧注入4号機システム、2021年7月～現在、劉雨晨、伊東克己 |
| 作品 | 【地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化実験】コア常圧注入新3号機、2020年9月～現在、劉雨晨 |
| 作品 | 【地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化実験】2次元準常圧注入新2号機、2020年7月～2021年7月、劉雨晨、リイキン、栗原正典 |
| 作品 | 液化ガスエマルジョン作成装置、2020年7月～2021年2月、劉雨晨 |
| 作品 | 【地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化実験】コア常圧注入3号機、2019年2月～2020年4月、劉雨晨、栗原正典 |
| 作品 | 【地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化実験】2次元常圧注入2号機、2018年9月～2019年1月、劉雨晨、栗原正典 |
| 作品 | 【地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化実験】2次元常圧注入1号機、2018年8月～2018年9月、劉雨晨、栗原正典 |
| その他・外部資金 | メタンハイドレートの実践的な開発に向けた砂泥互層における地盤改良剤によるメタンハイドレート層の安定化手法の研究、公益財団法人 新井科学技術振興財団 令和2年度研究助成金(特別)、2021年4月～2023年3月、栗原正典、劉雨晨 |
| ※ | 博士論文に直接関係のない研究業績一覧 |
| 論文 | 人工加振波形の逆解析による地盤改良効果の評価、東京工業大学、2015年3月、劉雨晨、修士論文 |

早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏名： 劉 雨晨

印

(2023年 6月 29日現在)

| 種類別 | 題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む） |
|---------|---|
| 論文 | 商河構造帯商三区断層特性及びシール性評価、中国石油大学（華東）、2011年6月、劉雨晨、卒業論文 |
| 総説/MISC | 人工加振波形の逆解析による地盤改良効果の確認、物理探査学会第131回学術講演会論文集、38-41、2014年10月、劉雨晨、山中 浩明、地元 孝輔 |
| 講演 | 衝撃弾性波法における効率化を目的とした新型ストリーマー製作、応用地質第30回東京支社技術発表会、埼玉県さいたま市、2016年10月、劉雨晨、山内 政也 |
| 講演 | 人工加振波形の逆解析による地盤改良効果の確認、物理探査学会第131回学術講演会、静岡県静岡市、2014年10月、劉雨晨、山中 浩明、地元 孝輔 |
| 講演 | 衝撃回避可能な運転席シートの発明経緯及び所感、中国石油大学イノベーションフォーラム、中国山東省、2009年12月、劉雨晨 |
| 講演 | 衝撃回避可能な運転席シート、中国石油大学（華東）第1回大学生特許製品設計コンペ並びに山東省第1回大学生特許製品設計コンペ、中国山東省、2007年12月、劉雨晨 |
| 特許 | 内燃機関を利用した感染症対策可能な陰圧空調システム、特開2021-186152、日本国特許庁、2020年5月、劉雨晨 |
| 特許 | 内含气囊式车顶内饰板、CN201224376Y、中国国家知識産権局（特許庁）、2008年4月、劉雨晨 |
| 特許 | 超车路况撮像監控装置、CN201132504Y、中国国家知識産権局（特許庁）、2007年12月、劉雨晨 |
| 特許 | 可避让冲击式驾驶座、CN201128385Y、中国国家知識産権局（特許庁）、2007年12月、劉雨晨 |