HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	宗谷夾炭層を対象とした地下バイオメタン鉱床造成/生産法の実証試験について
Author(s)	木山, 保; 猪股, 英紀; 上野, 晃生 他
Description	一般社団法人資源・素材学会 2020年度 春季大会、2020年3月15日～17日、千葉工業大学 津田沼キャンパス、習志野市（開催中止）
Citation	資源・素材講演集, 8 (2020) (1 (春・千葉))
Issue Date	2020-03-15
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/77148
Type	conference paper
File Information	05_1K62507-18-02_2019-MMIJ-spring.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

一般講演
開発機械/岩盤工学/資源開発技術
2020年3月15日(日) 13:00 ～ 17:20 第4会場 (6号館 2階 625講義室)

[1K62507-18-02] 宗谷夾炭層を対象とした地下バイオメタン鉱床造成/生産法の実証試験について
Pilot Experiment for Subsurface Cultivation and Gasification on Soya Coal bed.

○木山 保[1]、猪股 英紀[1]、上野 晃生[1]、玉澤 聡[1]、玉村 修司[1]、村上 拓馬[1]、藤井 義明[2]、青山 秀夫[3]、山口 眞司[3]、水澤 孝仁[3]、佐々木 利基[3]、金子 勝比古[1]（1. 公益財団法人北海道科学技術総合振興センター幌延地圏環境研究所、2. 北海道大学、3. 三菱マテリアル株式会社）

○tamotsu kiyama[1], hidenori inomata[1], akio ueno[1], satochi tamazawa[1], syuji tamamura[1], takuma murakami[1], yochiaki fujii[2], hideo aoyama[3], shinji yamaguchi[3], takahito mizusawa[3], toshiki sasaki[3], katsuhiko kaneko[1]（1. Northern Advancement Center for Science &Technology Horonobe Research Institute for the Subsurface Environment, 2. Hokkaido University, 3. Mitsubishi Materials Corporation）

キーワード：地下バイオメタン鉱床造成/生産法(SCG法)
Subsurface Cultivation and Gasification

北海道北部の地下には，天北炭田の褐炭層が広範囲にわたって賦存している。これらの褐炭は過去には採掘されてきたが，現在では利用されていない。幌延地圏環境研究所は，地下バイオメタン鉱床造成/生産法(SCG法)を提唱し，微生物を用いて未利用の地下有機物資源からバイオメタンを生産する技術について，基礎的な研究を進めてきた。2019年度から，SCG法の実証に向けた原位置試験に着手し，猿払村小石鉱区において，新第三系宗谷夾炭層の一番層を試験対象褐炭層として3本の試験孔を掘削し，試験対象層の上下盤への遮水処理を施し，初期状態を把握するために揚水して孔内水を炭層から湧出する地下水に置換し，基本的な観測装置を設置した。また，揚水作業で得られたデータから，初期状態の原位置の浸透率の評価を試みた。本発表では，SCG法の概念を紹介するとともに，現在進行している試験の内容と今後の進め方について議論する。

©一般社団法人資源・素材学会

1. はじめに

大気中のCO_2濃度の上昇が地球温暖化の要因の一つとして考えられている。原子力発電の稼働率が低迷し，再生可能エネルギーの利用が推進されているもののエネルギー全体に占める比率はまだ低い現状において，石炭，石油および LNG などの化石燃料を主とする炭素，炭化水素の燃焼によるエネルギーの確保は，依然として社会から要求され続けている。炭素および炭化水素は酸素と反応して燃焼し，H_2O および CO_2と熱エネルギーを生成する。たとえば，水素，炭素，メタン，プロパン，ドデカンおよびナフタレンの燃焼は以下のようになり，。それぞれ 1mol の物質を燃焼したとき，反応式に従ってH_2O およびCO_2が生成され，熱エネルギーが得られる。

$$H_2 + \frac{1}{2}O_2 = H_2O + 241.1[kJ/mol]$$

$$C + O_2 = CO_2 + 406[kJ/mol]$$

$$CH_4 + 2O_2 = CO_2 + 2H_2O + 802.3[kJ/mol]$$

$$C_3H_8 + 5O_2 = 3CO_2 + 4H_2O + 2043.1[kJ/mol]$$

$$C_{12}H_{26} + 18.5O_2 = 12CO_2 + 13H_2O + 7513.6[kJ/mol]$$

$$C_{10}H_8 + 12O_2 = 10CO_2 + 4H_2O + 4980.9[kJ/mol]$$

表 1　combustion materials and CO_2/heat ratio

material	required O_2	product CO_2	product H_2O	heat production	CO_2/heat ratio
	mol	mol	mol	kJ	mol/kJ
H_2	0.5	0	1	241.1	0.00000
C	1	1	0	406	0.00246
CH_4	2	1	2	802.3	0.00125
C_3H_8	5	3	4	2043.1	0.00147
$C_{12}H_{26}$	18.5	12	13	7513.6	0.00160
$C_{10}H_8$	12	10	4	4980.9	0.00201

表 1 ではこれをまとめ，さらに単位熱量，ここでは 1kJ の熱量あたりの生成 CO_2を mol 数で示した。炭素単体では 1kJ の熱量に対して 0.00245mol のCO_2が生成されるのに比べて，メタンでは 0.00125mol となり，およそ 1/2 となる。すなわち，炭素および炭化水素の中で生成される単位熱量あたりに生成されるCO_2が最も少ないのはメタンで，燃焼により得られるエネルギーとしては環境負荷が最も低い。

北海道の北部（道北）地域には，天北炭田宗谷夾炭層の褐炭層が広く分布している。これらは過去に採掘稼行対象とされ，中小の坑内採掘炭鉱が数多く存在したが，現在はすべて閉山し，地下に莫大に賦存する褐炭層は未利用のまま放置された状態である。海外に目を向けても，褐炭は輸送中に自然発火を起こしやすい特徴を有するため，利用方法の展開には制約が多い。褐炭を安全に有効利用できる技術が開発されることが望まれるが，上述したように石炭の一種である褐炭をそのまま燃焼させた場合，単位熱量あたりに生成されるCO_2は比較的多いので，環境負荷は高いといえる。道北地域には，褐炭の他に，サロベツ原野の泥炭，珪藻質泥岩に含まれる有機物など，さまざまな有機物が地下に大量に賦存する。

幌延地圏環境研究所は，日本原子力開発機構の深地層研究施設を活用し，地下空間を利用した地球環境の改善を図るための諸研究を展開することを目的として平成 15 年度に設立され，平成 24 年度からの第二期長期計画では地下微生物を活用した地層内メタン生成に関する研究を推進してきている。本研究所は SCG 法（Subsurface Cultivation and Gasification; バイオメタン鉱床造成/生産法）を提案し，道北地域の堆積岩，とくに天北炭田の褐炭を対象として地層内バイオメタンの生成プロセスとその制御方法の解明を進めてきた。未利用のまま大量に地下に賦存する褐炭から安全な方法で環境負荷の低いメタンを生成する技術開発の推進を目指している。

令和元年度（2019 年度）は，三菱マテリアル(株)との共同研究により，同社が鉱業権を有する天北炭田小石鉱区において SCG 法の原位置試験を実施した。本報告では，SCG 法の概要，原位置試験計画を説明したうえで，2019 年度に実施した原位置試験の実績と，2020 年度以降の試験計画について紹介したい。

2. SCG 法の概要と原位置試験計画

SCG 法は，地下の未利用有機物からメタン生成微生物によりバイオメタンを生産する技術として，2015 年に幌延地圏環境研究所が提唱した。地層中のメタン生成微生物は，二酸化炭素や水素および酢酸やギ酸といった低分子量有機酸を基質として代謝副産物としてメタンを生成すると考えられる。一方，未利用の褐炭や泥炭，さらに珪藻質泥岩の間隙中の有機物から低分子量有機酸などを生成すれば，これらはメタン生成微生物の代謝基質として利用され，メタンの生産が可能となる。地下の未利用の難分解性有機物から低分子量有機酸に分解する方法として，化学的な方法や微生物の働きを利用した方法が考えられるが，現在のところ幌延地圏環境研究所では過酸化水素により化学的に低分子量有機酸を生成する方法を主として検討している。過酸化水素は，たとえば褐炭などと反応してさまざまな

低分子量有機酸を安定的に生成でき，反応後は水となるので環境負荷が低いという優位性がある一方，反応後に pH が低下するためメタン生成微生物が生育する環境に一旦大きなダメージを与えることになり，pH の回復に要する時間などを検討する必要がある。

図 1　SCG 法の概要

SCG 法の前半のプロセス，すなわち難分解性有機物を低分子量有機酸に分解するプロセスで過酸化水素の利用を検討している。そこで，室内試験でこれを模擬した試験を実施し，データの蓄積を図っている。図 2 は，1.5g の褐炭と 225mL の 0.3%過酸化水素水の反応で生成される低分子量有機酸を計測した事例である。ここでは 4 レベルの温度で試験を実施し，最終的に生成される有機酸量は大きな差異は認められないが，温度が高くなると反応時間は短縮される。

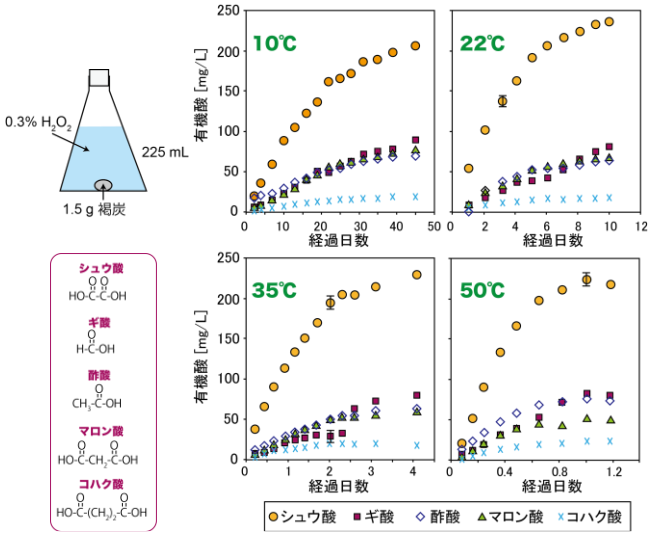

図 2　褐炭と過酸化水素の反応にともなう低分子量有機酸の生成とその温度特性

SCG 法の後半のプロセスでは，褐炭と過酸化水素の反応液を基質として，メタン生成微生物が代謝の副産物としてメタンを生成する。そこで，室内試験でこれを模擬するために，褐炭と過酸化水素の反応液を基質として，メタン生成微生物を含む原位置採取地下水を入れて培養し，メタンが生成されるかどうかを確認してきた。褐炭と過酸化水素反応液の濃度依存や培養液に粒状褐炭を入れた場合と入れない場合など，さまざまな条件を考慮して試験を実施し，メタン生成メカニズムと最適な条件に関する検討を重ねてきた。下記の図はその一例で，幌延地圏環境研究所が観測対象としている宗谷夾炭層のボーリング孔から採取された地下水と数種の濃度に調整した褐炭と過酸化水素反応液および固相の有無をパラメータとして培養試験を実施した結果である。当所では，褐炭などの難分解性有機物を対象として生成された過酸化水素反応液を基質とし，主に道北地域で採取してきた地下水および微生物群を培養し，濃度や温度，pH などの組み合わせを変えてデータを蓄積してきた。

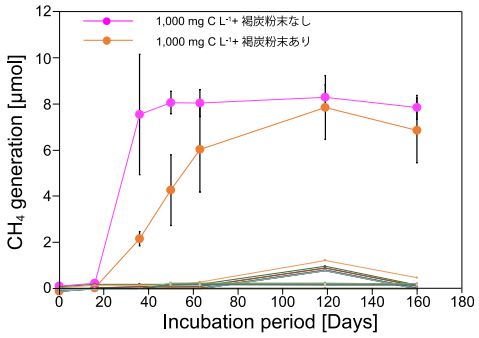

図 3　褐炭+過酸化水素反応液を基質としてメタン生成微生物を培養した際のメタン生成の経時変化

3.　2019 年度の原位置試験結果

2019 年 7 月，北海道猿払村小石地区において 3 本の試験孔が掘削され，SCG 法の原位置実証試験が開始された。図 4(左)に試験サイトの位置を示す。試験サイトは猿払村小石地区に位置し，研究所のある幌延の北東方向にあり，距離はおよそ 60km である。SCG 法の原位置実証試験は，三菱マテリアル株式会社との共同研究として実施している。この小石地区は三菱マテリアルの褐炭鉱区の一つで，試験に関連する掘削や行政的な許可申請および安全管理などは三菱マテリアルが主体となり，石炭鉱山の範疇に位置付けて進めている。

図 4(右)は試験サイト周辺の模式的な地質断面図である。SCG 法の原位置実証試験は，宗谷夾炭層の層厚が 4～6m の 1 番層褐炭を対象として実施することとした。試験サイト周辺において，宗谷夾炭層は向斜構造を呈している。当初，掘削実績の豊富な向斜軸の西側で試験孔の掘削地点を設定したが，尾根地形で地下水位が低いことが懸念されたので，向斜軸の東側に変更した。

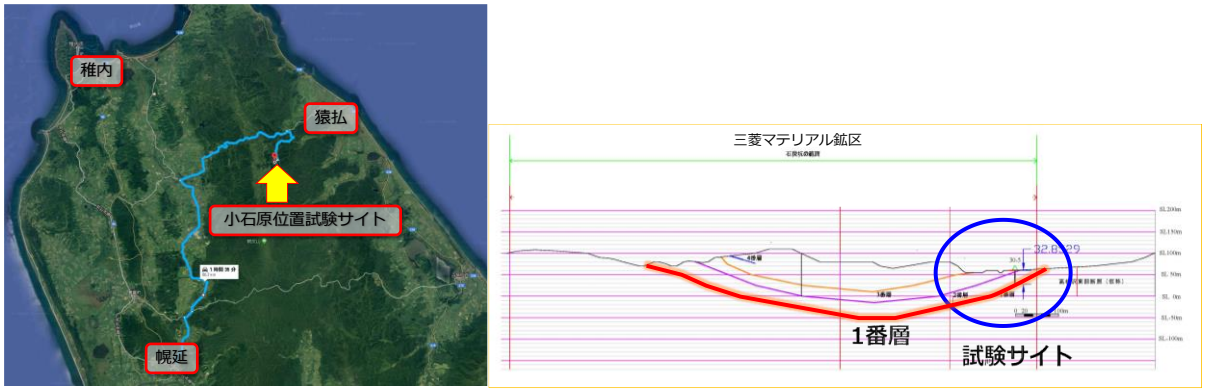

図4　SCG 法原位置実証試験の位置(左)および模式的な地質断面図(右)

2019 年度の原位置試験の作業項目は次のようである。

① 試験体制の整備:許可申請:経産局，森林管理署，猿払村，北海道
② 掘削:地上から数 10m 地下の炭層に向けて，H_2O_2 注入孔と参照孔の複数孔を掘削。孔の炭層部分以外は止水・遮水処理。
③ サンプリング:掘削直後の新鮮なコア(岩石，炭層)を分取して持ち帰り，室内試験を実施。
④ 初期揚水洗浄:孔の容積の 3 倍以上の地層水を汲みだし，残留した掘削水を排除。揚水流量と水位変化から浸透率を評価。
⑤ 現場保全対策:孔保護用ガレージの設置。電気牧柵の設置など。
⑥ 孔口元処理:密閉構造の口元装置を設置。微生物培養容器&複合型プローブを投入。口元計測装置(ガス濃度・流量計測，ガス排気)の設置。
⑦ 定常サンプリング&計測:複合プローブのポンプ機能により採水サンプリング(微生物，地下水)。
⑧ 越冬対策:バッテリーによる EXO1 およびガス濃度&流量の自動計測開始。

試験孔の掘削は，2019 年 7 月に開始された。直径 66mm のオールコアボーリングで掘削した後，直径 116mm に拡孔し，VP50 のケーシングパイプを建て込んだ。試験対象区間のケーシングパイプは有孔管として，地下水の入出を可能とした。孔壁とケーシングパイプのクリアランスは，試験対象区間の上下 2m の部分はベントナイトペレットを投入して遮水区間とした。試験対象区間は珪砂を投入して地下水の流動を妨げないようにした。上部ベントナイトペレット投入区間の上はモルタルを投入してケーシングパイプを固定し，同時に遮水を補

助した。図 5 は，掘削終了後の 30-4 孔と掘削中の 30-6 孔を示したものである。

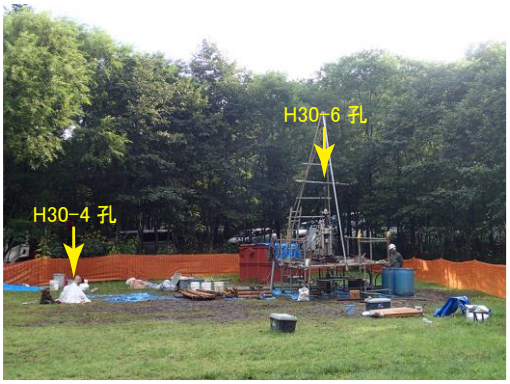

図 5　SCG 法原位置実証試験の掘削孔 30-4 孔および 30-6 孔

試験孔の柱状図を示す。掘削は，試験サイトの動線を考慮して，30-5 孔，30-4 孔，30-6 孔の順で掘削した。30-5 孔では，深度 10m で炭質頁岩は確認されたものの，その後明瞭な層の厚い褐炭層には着炭しなかった。最初の掘削であったため，深度 40m まで掘削したが褐炭層には当たらなかった。そこで炭質頁岩層の部分を試験対象区間とみなして有孔管を配置した。試験全体の計画が懸念される中，30-4 孔を掘削したところ，深度 14m で層厚が 6m の褐炭層に着炭した。層厚 6m のうち上下 1m ずつは遮水区間にして中央部の 4m に有孔管を配置した。つづいて 30-6 孔の掘削では，深度 18.5m で層厚 6m 以上の褐炭層に着炭した。ここでも上下 1m 以上を遮水区間にして中央部の 4m に有孔管を配置した。なお，30-4 孔および 30-6 孔では褐炭層の上部に堅硬な砂岩層が存在し，さらに 30-4 孔では薄い凝灰質シルト岩が確認された。これらは従来のデータから 1 番層の特徴に一致し，この褐炭層は 1 番層と考えられる。一方，30-5 孔の地質との大きな隔たりに関しては，現在のところ説明できるものがなく，課題として残る。

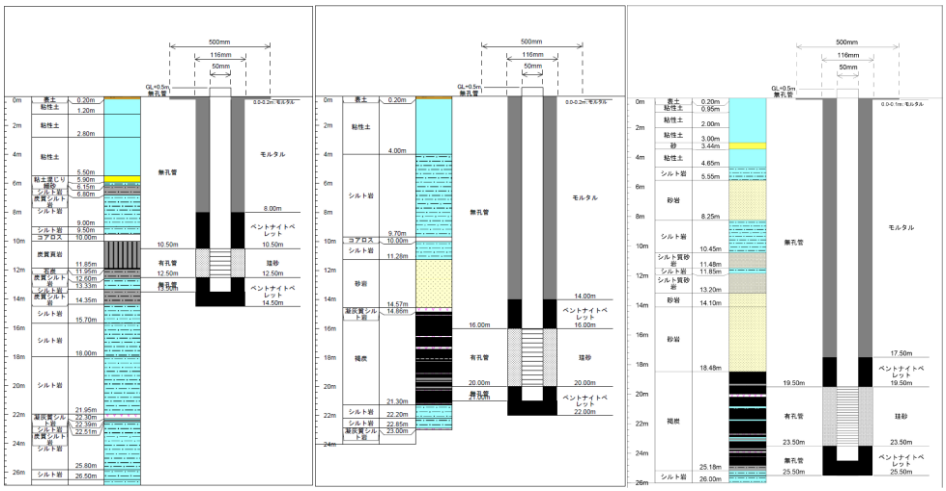

図 6　試験孔の地質柱状図および孔処理図。30-5 孔(左)，30-4 孔(中)および 30-6 孔(右)。

試験孔の掘削の際，用いる掘削泥水は近くの河川水をベースとして調整した。このため，掘削後の孔内には河川水が残留している可能性がある。そこで掘削後，初期揚水洗浄を実施し，孔の容積の 3 倍以上の地下水を汲み出し，孔内に残留していた河川水を排除した。揚水ポンプは MP-1 を用いて汲み出し，ポンプの上方に掘削水が残らないように注意した。

揚水後，十分な時間が経過し，それぞれの試験孔の安定した地下水位は，図 7 に示すように，30-5 孔で標高 55.73m，30-4 孔で 55.42m，30-6 孔で 55.44m であった。このデータから試験サイトの動水勾配を計算すると，図に示す方向に 0.0154 という値で示される。なお，30-5 孔では有孔管が置かれた地質が，30-4 孔および 30-6 孔とは異なり，地質構造に関しても不明な点があるので，データの評価には注意する必要があると考える。

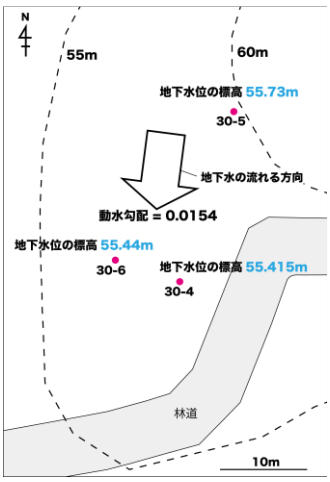

図 7　試験孔の地下水位の標高と動水勾配

試験孔の地上の保全対策を実施し，孔の地上部分に密閉構造の口元装置を設置した後，30-4 孔と 30-6 孔には複合プローブを投入した。複合プローブは，EXO1 多項目水質計をベースとして，この下部に微生物培養容器を配置し，上部に水位計，チェックバルブ型ポンプ，孔底流通チューブを配置したものである。微生物培養容器には，原位置からコアで採取された褐炭を一旦滅菌処理し，これをメッシュ状の袋に入れて，孔内の原位置に戻してやり，SCG 法のプロセスの中で繁殖する微生物を収集することを目的としている。採水用のチェックバルブ型ポンプは，地上で駆動流体を往復動させるだけで孔内の地下水を揚水することのできる装置である。孔底流通チューブは，次年度以降，水または過酸化水素水の圧入を行うときに用いるチューブで，地上のポンプから圧送された流体がこのチューブの先端から放出される。

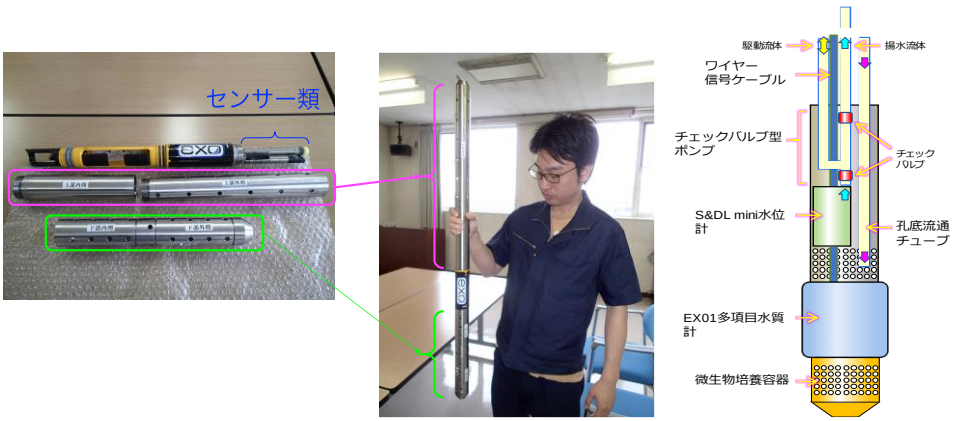

図 8　製作された複合プローブ

図 9 に，試験孔地上部の計測システムを示した。試験サイトのある小石地区は，ここに通じる道道が 11 月上旬から翌年の 5 月上旬まで閉鎖されるため，いっさい行くことができない。また，商用電源は 8km 手前で途切れており，ソーラーパネルも検討したが風雪のリスクがきわめて高い。携帯電話等の電波は届かないので，衛星電話を用いたデータ送受信も検討したが，いまのところ現実的ではないと判断した。このため，冬季間のデータは図 9 のようなシステムで構成した。まず，EXO1 多項目水質計（マルチ水質計）は本体にロガーが内蔵されているので，地上部にバッテリーを配置してデータの収集を行う。掘削・洗浄しただけの現時点では何も湧出しないと想定しているが，今後，メタンが生産されるのであれば，初期状態の孔からの気体の湧出の有無と量を観測しておくことは重要である。試験孔は密閉型なので，湧出した気体は口元のチューブに導入され，気体の流量計，メタン濃度計を通過し，最終的に屋外に放出され，流量と濃度からメタンの湧出量が把握される。流量計と濃度計およびそれぞれのロガーとタイマーは，バッテリーで駆動する。試験孔口元は風雪や獣害から保護するためにガレージ内に収められ，計測システムは断熱材容器に収納されているが，この地域は冬季には-30℃程度まで気温が下がる寒冷地なので，データが収集されているかどうか，バッテリーの量の良し悪しや断熱対策の良し悪しは，次年度の道道の開通まで判断できない。

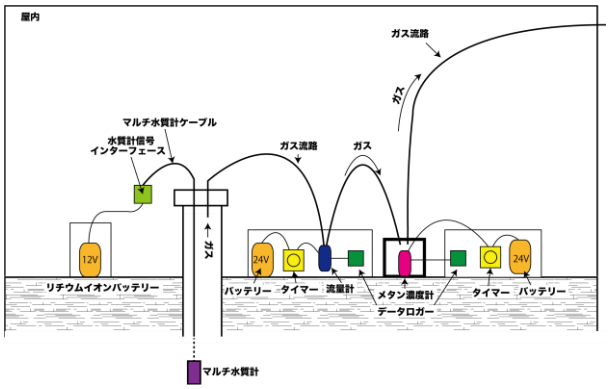

図 9 越冬期間の計測システム

4. 2020 年度以降の試験計画

2020年5月上旬に試験サイトへの通行が可能となるのを待って，原位置試験は次のステップに移行する。現時点では下記のような項目を検討中である。

① 過酸化水素水の圧入は，30-4孔，30-6孔のうちの1孔とし，他孔は比較データの取得に用いる。いまのところ，炭層の深度が深い30-6孔への圧入を検討している。

② 過酸化水素水の圧入の前に，水（淡水）の圧入を実施する。浸透率特性，水質変化，原位置の微生物の活動などの比較データを取得する。

③ ここで，水は海洋深層水を使用する。海洋深層水は，地下水とは異なる水素同位体比を有するので，圧入した水の水素を材料として生成されたメタンは，同位体比の分析により，炭層にもともと賦存していたメタンと区別することが可能となる。同じ理由で，後の過酸化水素水の圧入においても，高濃度の過酸化水素を希釈する溶媒として海洋深層水を使用する。

④ さらに，水（淡水）には，原位置の地下水のおよそ5倍程度の塩分を添加する。これにより圧入した水の滞留状況を電気伝導度測定で評価する。なお，原位置の地下水の塩分濃度は十分低いので，この5倍の濃度でも淡水のレベルで，微生物や化学反応への影響は考えにくい。水素同位体比でも原理としては可能であるが，分析に時間がかかるので適切ではない。

⑤ 水の圧入量は，1m3 程度を検討している。試験対象区間の炭層の間隙率にもよるが，圧入領域は半径 1～2m 程度となる。

⑥ 過酸化水素水は，濃度を 0.3%，圧入量は水と同じ 1m3 で検討している。

⑦ 水および過酸化水素水の圧入流速は，5L/min 程度とし，原則として 1 日で圧入を終了させることを目標とする。

⑧ 過酸化水素は酸素などの気体が発生しやすい物質なので，水および過酸化水素水の圧入には，圧力変動（脈動）の小さい連続注入型のポンプが望ましい。このため，モーノポンプの利用を検討している。

⑨ 水（淡水）の圧入後，孔内が安定するのを待って，過酸化水素水の圧入に移行する。いまのところ，1か月程度の間隔をあける予定である。

⑩ 過酸化水素水の圧入後は，定期的または適宜，採水，水質データ取得などを実施し，常時，湧出ガスの自動計測を行う。

.

5. おわりに

2019 年 7 月，猿払村小石地区において SCG 法の原位置実証試験が開始された。本年度は試験孔の掘削と，初期データの収集，冬季間の自動観測設備の立ち上げ等を行い，採取された地下水およびコアの分析を開始した。3 本試験孔のうち，2 本で層厚の十分な褐炭層に着炭し，SCG 法原位置実証試験のフィールドが整備された。2020 年度は試験孔への過酸化水素水の圧入を開始し，難分解性有機物である褐炭から原位置で低分子量有機酸を生成させるプロセスに移行する。その後，低分子量有機酸の生成や pH の回復を投入型のプローブおよび採水分析で観測する。メタン生成微生物の生育条件が整えば，生成されたメタンが採取・計測されるステージに進展する。これらに関しては次の機会に報告できることを期待している。

（参考文献）

1) 荒牧憲隆 ， 玉村修司 ，A.K.M. Badrul Alam， 金子勝比古：Journal of MMIJ, 131 (2015) ,285-292

2) 玉村修司 ， 赤塚真依子 ， 井川怜欧 ， 越谷賢 ， 清水了 ， 上野晃生 ， 大味泰 ， 金子勝比古 ，五十嵐敏文 ， 丸井敦尚：地球化学 ，48 (2014) , 39-50

3) A. Ueno, S. Shimizu, S. Tamamura, H. Okuyama, T. Naganuma and K. Kaneko: Scientific Reports, (2016) , 6:18990

4) 荒牧憲隆 ， 玉村修司 ，A.K.M. Badrul Alam， 山本愼一 ， 重吉八郎 ， 金子勝比古：Journal of MMIJ, 132 (2016) , 71-79.