



Title	北海道・道北における地下バイオメタン鉱床造成/生産法：Ⅰ．原位置試験の概要および過酸化水素水圧入特性
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 2021年度 春季大会．2021年3月8日～10日．オンライン開催．
Citation	資源・素材講演集，8(2021)(1(春))，1K0108-17-01
Issue Date	2021-03-08
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/80575
Type	conference paper
File Information	Kiyama et al. 2021-3.pdf



一般講演

開発機械／岩盤工学／資源経済と社会システム／資源開発技術

Mining and underground construction machineries / Rock Engineering / Resource based economy and social system / Mining technologies

2021年3月8日(月) 13:00 ～ 17:00 第1会場

[1K0108-17-01] 北海道・道北における地下バイオメタン鉱床造成/生産法:
 I. 原位置試験の概要および過酸化水素水圧入特性
 Subsurface Cultivation and Gasification (SCG) method:
 I. Overview of In-situ experiments and hydrogen
 peroxide injection characteristics

○木山 保¹、猪股 英紀¹、上野 晃生¹、玉村 修司¹、村上 拓馬¹、玉澤 聡¹、山口 真司²、佐々木 利基²、水澤 孝仁²、藤井 義明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. 三菱マテリアル株式会社、3. 北海道大学)

○TAMOTSU kiyama¹, hidenori inomata¹, akio ueno¹, shuji tamamura¹, takuma murakami¹, satoshi tamazawa¹, shinji yamaguchi², toshiki sasaki², takahito mizusawa², yoshiaki fujii³, katsuhiko kaneko¹ (1. Northern Advancement Center for Science & Technology Horonobe Research Institute for the Subsurface Environment, 2. Mitsubishi Materials Corporation, 3. Hokkaido University)

キーワード：地下バイオメタン鉱床造成/生産法(SCG法)、褐炭、過酸化水素、未利用有機物、微生物活動

Subsurface Cultivation and Gasification, Lignite, Hydrogen peroxide, Unused organic materials, Microbial Activities

幌延地圏環境研究所は、2019年度から地下バイオメタン鉱床造成/生産法（以下、SCG法）の原位置実証試験を猿払村小石鉱区で開始している。SCG法とは、地下未利用有機物（ここでは褐炭）を、まず化学反応または微生物活動で低分子有機酸に分解し、つぎにメタン菌などの微生物活動で低分子有機酸からメタンを生成する技術である。2019年、地下20mに賦存する宗谷夾炭層の褐炭層にケーシング内径50mmのボーリング孔を掘削し、2020年7月、約1tonの0.3%過酸化水素水を圧入した。過酸化水素水圧入の1か月前に、比較データ取得などを目的として、約1tonの海洋深層水を圧入している。2種類の流体の圧入はどちらも同じ定流量となるようポンプを制御して実施したが、これに対して異なる圧力変化挙動が観測された。これは、過酸化水素水と褐炭の化学反応にともない、地層内の流動特性が変化したこと起因すると考えられる。

1. はじめに

大気中の CO₂ 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。2020 年 10 月に 2050 カーボンニュートラルが宣言されたが、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、炭素、炭化水素の燃焼によるエネルギーの利用は、削減しながらも継続して並行利用されることになるだろう。

炭素、炭化水素の中で、単位熱量あたりの生成 CO₂ が最も少ないのはメタンであり、メタンの利用は環境負荷が低いと言える。

北海道の北部(道北)地域には、天北炭田宗谷炭層の褐炭層が広く分布している。天北炭田は過去に採掘稼行対象とされ、多くの坑内採掘炭鉱が存在したが現在はずべて閉山し、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。褐炭は輸送中に自然発火を起こしやすい特徴を有し、そのまま燃焼させた場合には単位熱量あたりに生成される CO₂ は比較的多いので、環境負荷は高い。

そこで、幌延地圏環境研究所では、未利用で莫大に賦存する天北炭田の褐炭を、原位置で環境負荷の低いメタンに変換して回収する SCG 法(Subsurface Cultivation and Gasification; バイオメタン鉱床造成/生産法)を提案し、室内試験の後、2019 年度から原位置における実証試験を実施している。2019 年に試験孔を掘削し、2020 年には SCG 法の特徴の一つである過酸化水素水の圧入を実施し、現在は原位置での反応を観察している段階である。なお、本実証試験は、天北炭田小石鉱区において鉱業権を有する三菱マテリアル(株)との共同研究により進めている。

本報告では、SCG 法の概要、原位置試験計画を説明した上で、2020 年度に実施した過酸化水素水圧入について紹介し、過酸化水素水が圧入された褐炭層の浸透率特性の変化に関して触れたい。

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(図 1)。地下の難分解性の未利用有機物は、まず低分子有機物や水素・二酸化炭素に酸化されたのちに、メタン生成微生物によりメタンに変換される。道北地域には、地下の難分解性の未利用有機物として、サロベツ湿原の泥炭、深地層研究施設などで対象となる珪藻質泥岩および天北炭田の褐炭が存在するが、本研究では天北炭田の褐炭を対象としている。これを分解する方法として、微生物分解と化学分解が考えられるが、本研究では過酸化水素水による化学分解を採用し、ギ酸・酢酸・シュウ酸などの低分子有機酸が生成されることを想定している。そしてこれらの有機酸を基質としてメタン生成微生物がメタンを生成することにより、エネルギー資源としてメタンガスを回収することを目標としている。研究全体としては、道北地域の地下環境に関するフィールド科学から、有機物の分解や微生物による代謝、あるいは流体の圧入に関する課題など、メタンガス鉱床開発の要素技術開発に展開している。



図 1 SCG 法の概要

現在進行している実証試験では、地表から比較的浅い深度の褐炭層に試験孔を掘削し、これに 0.3%(vol./vol.)の過酸化水素水 1m³を圧入し、褐炭との反応と微生物によるメタン生成を促し、基本的には圧入した試験孔からメタンガスを回収することを目標としている。圧入する試験孔の他に観測孔を掘削し、圧入時の周辺岩盤の挙動を観察し、その後の地層水の変化なども試験孔と対比させる。

図2に、原位置実証試験サイトの位置および地質断面図を示す。サイトは北海道猿払村小石地区にあり、幌延からの距離は約60kmである。ほぼ南北に軸を示す向斜構造を呈し、試験サイトは向斜軸の東側に設定し、対象褐炭層として宗谷灰炭層 1 番層を想定した。1 番層は、掘削実績から層厚が厚いとされる。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。なお本サイトは、商用電源がなく、通信電波が届かず、さらに 11 月初旬から翌年の 5 月初旬まで道路閉鎖されて立ち入ることができない。

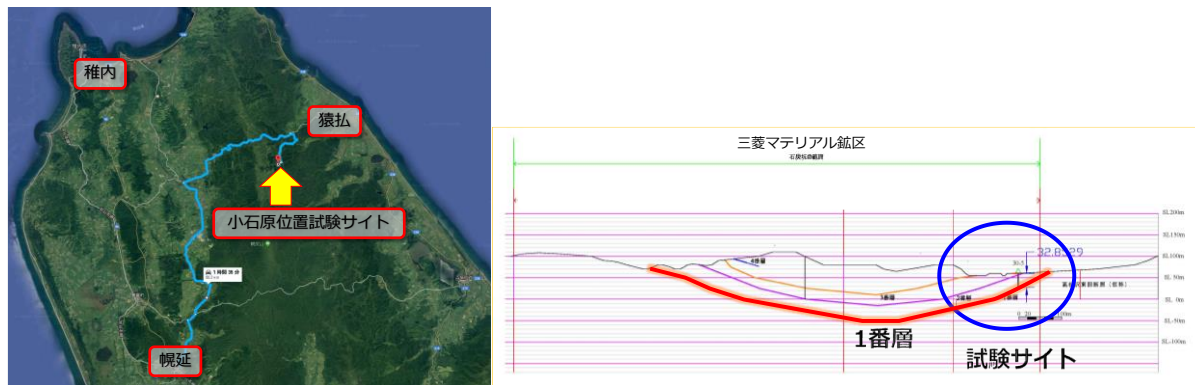


図2 SCG 法原位置実証試験の位置(左)および模式的な地質断面図(右)

試験孔の設計は、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むこととした。褐炭層などの試験対象区間では、ケーシングパイプを有孔管とし、孔壁とケーシングパイプのクリアランスには珪砂を投入して流動しやすくするとともに孔の崩壊を防いだ。試験対象区間の上下 2m のクリアランスにはベントナイトペレットを投入して遮水区間とした。上部の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、遮水を補助することとした。

実際の試験孔は、30-5 孔、30-4 孔、30-6 孔の順で 3 孔掘削した。図 3 に地質柱状図を示す。30-5 孔では、深度 10m で炭質頁岩は確認されたものの、試験対象に想定していた褐炭層には着炭しなかった。そこで仕方なく炭質頁岩層の部分を試験対象区間として有孔管を配置した。つづいて 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 のうち中央部の 4m を試験対象区間とした。さらに 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ので、中央部の 4m を試験対象区間とした。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。これらは従来の情報から 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い。

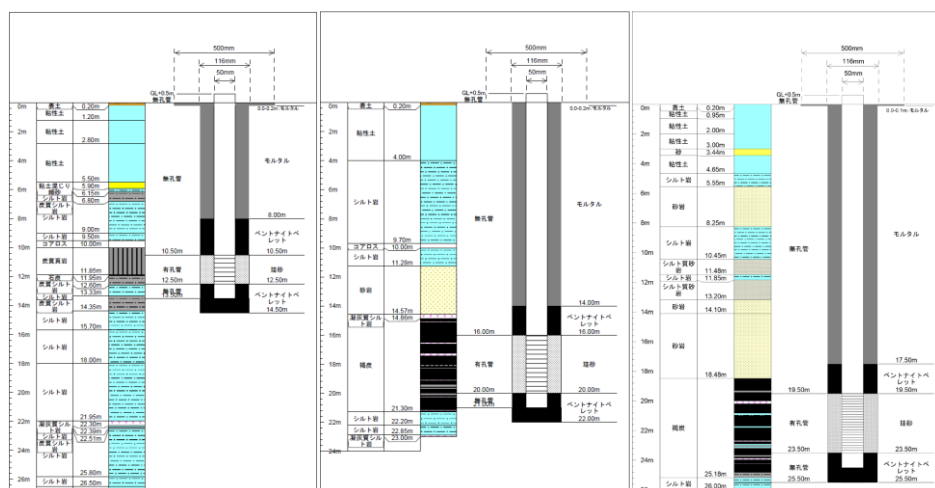


図3 試験孔の地質柱状図および孔処理図。30-5 孔(左)、30-4 孔(中)および 30-6 孔(右)。

掘削に用いた泥水は近くの河川水をベースとしたので、掘削後の孔内に残留している河川水を排出し、褐炭層から湧出する地層水に置換するため、孔の容積の 3 倍以上の孔内水を汲み出して孔内を地層水で充填させた。

図 4 に、3 試験孔の配置および地下水位などを示した。30-5 孔は他と地質が異なり、地下水位も高いことから、SCG 法の試験からは除外することとした。30-4 孔と 30-6 孔の地下水位はほぼ同じだが、褐炭層の深度が深い 30-6 孔を SCG 法の圧入試験孔に、30-4 孔を観測孔に定めた。なお、30-6 孔と 30-4 孔の離間距離は 8m である。これ以降の試験全体の流れは以下ようになる。

- ① 30-4 孔および 30-6 孔ともに孔口装置を取り付け、耐圧 1MPa の密閉型に仕上げた。
- ② 両孔に複合プローブ(後述)を投入し、初期データの収集と地層水サンプリングを開始した。
- ③ 孔口建屋内に湧出ガス計測装置を設置し、バッテリー、タイマーおよびロガーによる冬期間データ収集を開始した。
- ④ 翌年 5 月に冬期間のデータを回収し、地層水の化学分析データなどが長期経過により安定してきたことを確認した。
- ⑤ 圧入試験は 2 種類を実施した。まず先に、水(脱塩海洋深層水)を圧入し、比較データの収集を実施した。水の圧入後、化学分析データなどが安定するまで約 1 か月の観察期間を設けた。
- ⑥ つぎに SCG 法の本来の手法である過酸化水素水の圧入試験を実施した。濃度は 0.3%(vol./vol.)とし、溶媒は脱塩海洋深層水とした。
- ⑦ 道路閉鎖までの期間は、データの回収と地層水サンプリングを適宜継続した。
- ⑧ 前年とほぼ同様のシステムで冬期間データ収取を開始し、現在、越冬期間となっている。

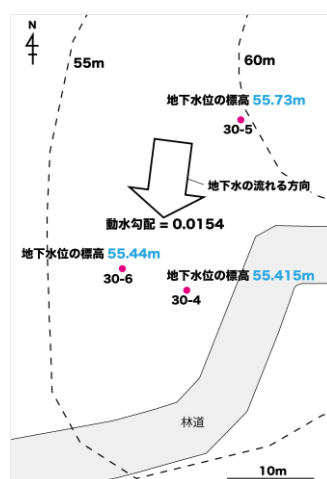


図4 試験孔の地下水位の標高と動水勾配

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、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。

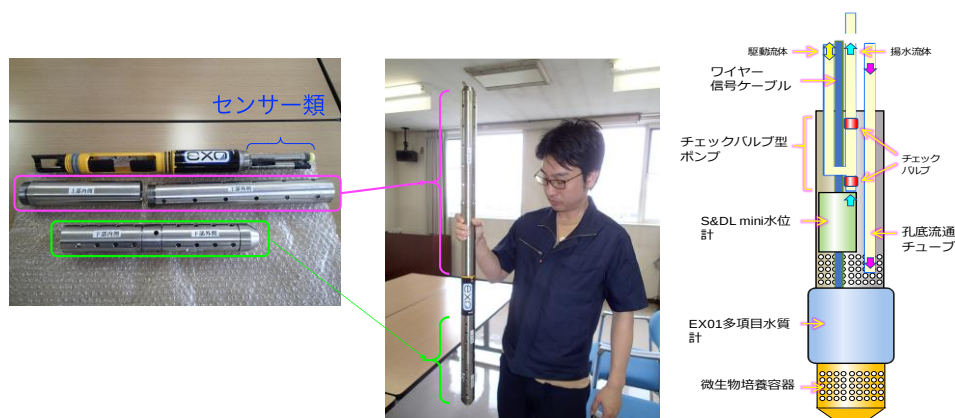


図5 複合プローブ

3. 試験孔への流体の圧入試験

圧入した水および過酸化水素水の溶媒には、酸素および水素の同位体比が原位置地層水とは異なる海洋深層水を用いた。これにより、今後湧出したメタンの同位体比を分析することにより、今回圧入した水または過酸化水素水を材料として新たに生成されたメタンか否かを特定できると考えられる。事前に $0.1\mu\text{m}$ のフィルターで濾過・滅菌した 1m^3 の海洋深層水を、中性洗剤で洗浄後に次亜塩素酸溶液で滅菌した 500L のポリエチレンタンク2個に共洗い後に貯留して、過酸化水素水の場合はこれに高濃度の過酸化水素水を添加して 0.3%(vol/vol)に調整し、サイトまでトラック輸送した。圧入ポンプには、最大圧力 1MPa、最大流量 5L/min、脈動がなく、定流量制御が可能なモノポンプを使用した。ポ

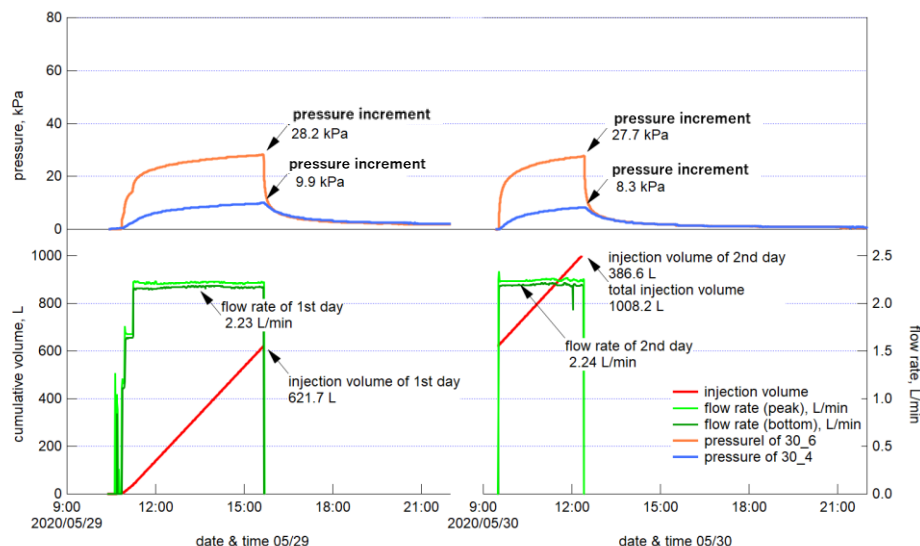
ンブには、圧力計および超音波流量計をセットしたが、圧力データは複合プローブに内蔵した水位計の出力を採用した。

水および過酸化水素水の圧入試験における、積算流量(L)、流速(L/min)、圧入孔(30-6 孔)の水圧変化(kPa)および観測孔(30-4 孔)の水圧変化(kPa)の結果を図6 (A:水の圧入, B:過酸化水素水の圧入)に示す。

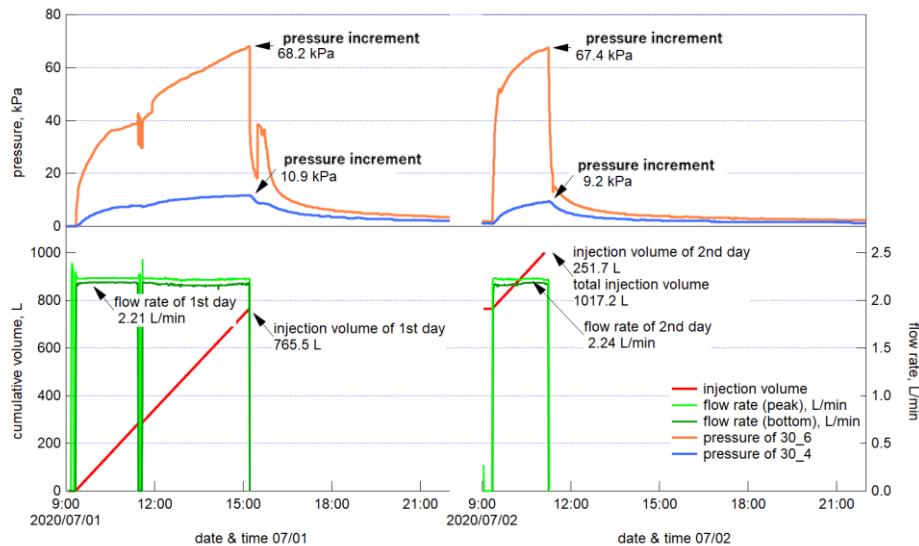
図6 (A:水の圧入)および(B:過酸化水素水の圧入)のグラフの下半には積算流量と流速を示すが、両者に共通して、圧入は2日間に分けて実施し最終的に1m³を圧入したこと、流速は約2.2L/minで一定に制御して圧入していることがわかる。流速をすべて一定に揃えているので、両グラフの上半に示した圧入孔(30-6 孔)および観測孔(30-4 孔)の水圧変化は、試験対象区間の褐炭層の水理特性の変化を反映していると考えられる。まず、水の圧入において、30-6 孔の水圧は圧入開始直後に20kPaまで急速に上昇した後、緩やかに収束するような挙動を示し、1日目の圧入の終了時では28.2kPaを示した。このとき観測孔の30-4 孔では同じように30-6 孔の圧入開始直後に水圧が上昇し、その後は収束するような挙動を示し、1日目の圧入の終了時は9.9kPaを示した。2日目も圧入開始直後に30-6 孔の水圧は急速に上昇した後、緩やかに収束して27.7kPaを示した。30-4 孔も1日目と同様の挙動を示し、終了時は8.3kPaを示した。

つぎに、過酸化水素水の圧入において、30-6 孔の水圧は圧入開始直後に20kPaまで急速に上昇し、その後も単調に増加する傾向を示し、収束するような挙動は示さなかった。1日目の圧入の終了時では68.2kPaを示した。一方、このとき観測孔の30-4 孔では30-6 孔の圧入開始直後に水圧が上昇し、その後は収束するような挙動を示し、1日目の圧入の終了時は10.9kPaを示した。30-4 孔の挙動は水の圧入と過酸化水素水の圧入の挙動はよく似ている。2日目も圧入開始直後に30-6 孔の水圧は50kPaまで急速に上昇し、その後も上昇する傾向を示した。圧入の終了時は67.4kPaを示した。この傾向を見ると、もし過酸化水素水の圧入を継続していたら水圧はさらに上昇したと思われる。一方30-4 孔では1日目と同様の挙動、また水の圧入と同様の挙動を示し、終了時は9.2kPaを示した。

特徴をまとめると、水の圧入では定流量の圧入に対して、圧入孔も観測孔も一定の水圧に収束し、定常的な流動状態を示した。一方、過酸化水素水では定流量の圧入に対して、圧入孔では水圧が上昇し続ける傾向を示すが、観測孔では一定の水圧に収束し、水の圧入と同様の挙動を示した。



(A): 水の圧入試験



(B):過酸化水素水の圧入試験

図6 圧入試験における積算流量、流速、圧入孔(30-6 孔)および観測孔(30-4 孔)の水圧変化

図7に、水圧入および過酸化水素水圧入における水位変化の模式図を示した。30-6 孔に圧入すると、8m 離れた 30-4 孔においても水圧が上昇する。まず、水の圧入における水位の挙動が定常状態を示したとみなして、試験孔の周辺の褐炭層がき裂や異方性を示さない一様な被圧帯水層と仮定すると、圧入流量 $Q(\text{m}^3/\text{s})$ を用いて褐炭層の透水係数を評価することができる。

$$k = \frac{Q}{2\pi L(h_1 - h_2)} \ln \frac{r_2}{r_1}$$

ここに、 k :透水係数(m/s)、 r_1 :圧入孔の掘削半径(m)、 r_2 :圧入孔から観測孔までの距離(m)、 h_1 :圧入孔の水頭(m)、 h_2 :観測孔の水頭(m)、 L :被圧層の層厚(m)とし、水頭は観測された水圧から変換した。その結果、透水係数は $2.46 \times 10^{-6} \text{m/s}$ となった。なお、掘削後の揚水試験による 30-6 孔の透水係数は $1.46 \times 10^{-6} \text{m/s}$ である。試験対象区間が浅いので、圧入に対しては比較的高い透水係数を示す可能性が考えられるが、いずれにしてもオーダーとしては調和的である。水の圧入において、圧入孔 30-6 孔および観測孔 30-4 孔において水圧が定常状態となったことから、対象となる褐炭層の透水性は変化していないと考えられる。

つぎに過酸化水素水の圧入において、褐炭は過酸化水素と反応して透水係数が低下するので、圧入孔の周辺に透水性低下領域が形成されると考えられる。過酸化水素水の圧入は一定流速で継続されるので、透水性低下領域の拡大も継続される。圧入流速は一定に制御されているので、透水性低下領域が拡大することに伴い、圧入水圧の上昇も継続すると考えられる。一方、透水性低下領域の外側の領域を考えると、水であれ過酸化水素水であれ、何らかの流体が同じ流速で流れてくるのはまったく同じ状態なので、観測孔の 30-4 孔の水圧変化挙動は、水圧入でも過酸化水素水圧入でもほぼ同様の挙動を示したと考えられる。また、両者が同様の挙動を示したことから、過酸化水素水は 30-4 孔に到達していないことを示唆すると考えられる。

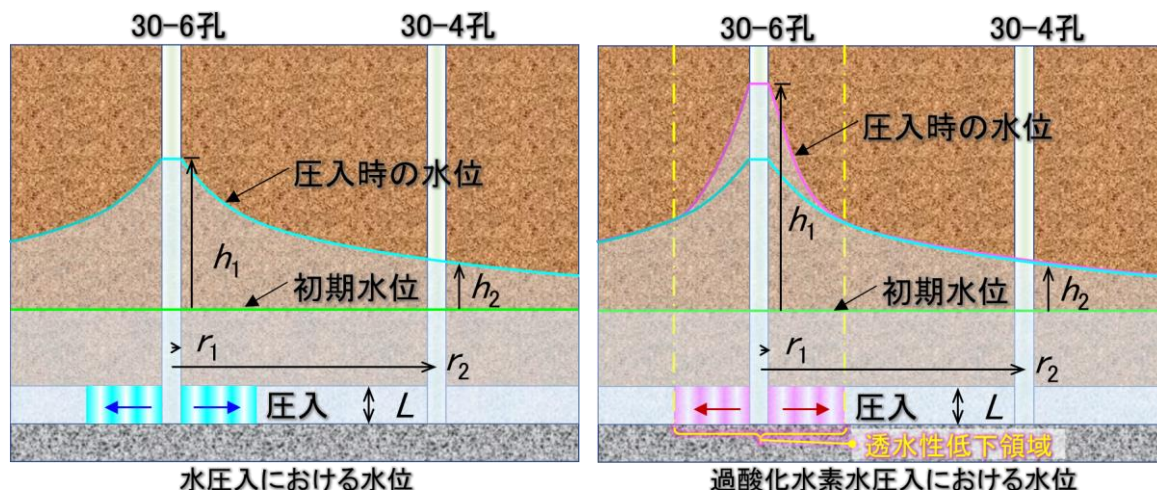


図7 圧入試験における水位の模式図。(左):水の圧入,(右):過酸化水素水の圧入。

4. 2021年度以降の試験計画

SCG法の実証試験は、2021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。圧入孔30-6孔および観測孔30-4孔は越冬前にヘッドスペースをアルゴンに置換したのちに密閉した。したがって、5月にサンプリングされるガスでアルゴン以外は地層から湧出したものとなるので、ガスの分析と湧出量の定量を試みる。なお、試験対象層の深度は20m程度と浅く、上述したように孔口装置は1MPaの耐圧を持つので、ヘッドスペースの内圧がこれを超えてガスが漏出することはない。圧入孔30-6孔にセットした複合プローブの多項目水質計は冬期間もデータを取得・保存しているので、これらのデータの解析を進める。さらに重要な項目は、約半年の越冬期間後の微生物叢の確認で、メタン生成微生物群などの活動が確認されるかどうかなどに着目して、以降の試験内容の検討を進める予定である。

5. おわりに

北海道猿払村小石地区において2019年7月に開始されたSCG法の原位置実証試験は、2020年7月に本法でもっとも主要な人為的な作業である過酸化水素水の圧入試験を完了し、現在は地層内での化学的な反応や微生物の活動を想定している段階である。本年度の圧入試験では、水および過酸化水素水の圧入で水理的な挙動が異なることが確認され、水の圧入では定常的な流れを示したのに対し、過酸化水素水の圧入ではこれが浸透した領域の透水係数が低下し、圧入水圧の増加が継続されることが確認された。SCG法における過酸化水素水圧入技術の確立のために、褐炭の過酸化水素水との反応に伴う透水特性のメカニズムを明らかにして、適正な過酸化水素濃度と圧入量及び圧入方法の策定を検討する必要があると考えられる。

(参考文献)

- 1) 猪股英紀, 木山保, 上野晃生, 玉澤聡, 玉村修司, 村上拓馬, 藤井義明, 金子勝比古, 他: 資源・素材学会 2020 年度春季大会, 2P0130-33-04, 地下バイオメタン・鉱床造成/生産法(SCG法)実証実験における宗谷炭層の透水性評価
- 2) 玉村修司, 村上拓馬, 木山保, 上野晃生, 玉澤聡, 猪股英紀, 五十嵐敏文, 他: 資源・素材 2020(仙台), 3K0207-15-06, 地褐炭と過酸化水素との反応における酸素の影響
- 3) 木山保, 猪股英紀, 上野晃生, 玉澤聡, 玉村修司, 村上拓馬, 金子 勝比古, 他: 資源・素材学会 2020 年度春季大会, 1K62507-18-02, 宗谷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
- 4) A. Ueno, S. Shinizu, S. Tamamura, H. Okuyama, T. Naganuma and K. Kaneko: Scientific Reports, (2016), 6:18990
- 5) 荒牧憲隆, 玉村修司, A.K.M. Badrul Alam, 山本慎一, 重吉八郎, 金子勝比古: Journal of MMIJ, 132 (2016), 71-79.