

メタンハイドレート層を模擬した凍結砂礫試料の 破砕性と分別性に関する実験的検討

EXPERIMENTAL STUDY ON CRUSHABILITY AND SEPARABILITY OF FROZEN SAND/GRAVEL MATERIALS MODELING METHANE HYDRATE

谷 和夫*・栗田宣子**

Kazuo TANI and Nobuko KURITA

Conceptual idea of Excavation-Separation-Recovery method for methane hydrate production from deep seabed was proposed. Very little, however, has been studied on how methane hydrate can be effectively separated from the other geomaterials, i.e., soils.

A series of experiments, free fall tests followed by sieve analyses and gravimetric separation, were conducted using various specimens of frozen geomaterials to investigate crushability of methane hydrate layer and separability of the relevant methane hydrate. The experimental results demonstrated that crushability and separability appears to be high for methane hydrate with coarser geomaterials, but very low with finer geomaterials.

Key Words: methane hydrate, crushability, separability, experiment

1. はじめに

メタンハイドレート（以後、MH と称す）は、我が国の近海にも豊富に存在すると推定されており、非在来型の天然ガス資源として注目されている。著者等は、海底の表面ないし浅部に賦存する MH を採掘する方法として、海洋土木の機械施工技術を積極的に活用し、かつ MH の物理的な特性を利用した掘削・分別・回収方式を新しい掘削方法の概念として提案した¹⁾。しかし、具体的な施工原理や実行可能性についての検討が不充分である。

本研究では、掘削した MH 層の塊を破砕して MH を土砂から分別する工程を想定して、MH 層の破砕性と分別性をそれぞれ落下破砕実験と比重選別実験により検討した²⁾。これらの実験では、堆積層中の間隙充填型の MH 層を想定して、分級された地盤材料を凍結した試験体を利用した。落下破砕試験では、落下回数に伴う粒度の変化から求まる破砕度や破砕値を調べた。また、落下後の破砕した試料に対して比重選別を行い、氷の回収率やずり混入率を調べた。

2. 落下破砕実験

MH 層を掘削し、MH をずりと分別するために適当な大きさまで破砕する際の破砕性を検討するために、落下

表-1 落下破砕実験に用いた試験体

試験体の種類	密度 ρ_t (g/cm ³)	構成粒子の 平均粒径 $D_{50.5}$ (mm)	一軸 圧縮強さ q_u (MPa)
凍結砂利	2.04	9.83	4.6 - 8.0
凍結砂	1.96	0.116	> 12
凍結粘土	1.28	0.00263	1.9 - 3.2
氷単体	0.91	-	1.5 - 2.5

* Ph. D. 横浜国立大学大学院 工学研究院

** 修士（工学） 帝国石油（株）

により衝撃破碎後に粒度分析する実験を行った。

(1) 実験の方法

力学特性が MH に類似している氷を模擬材料として利用し、表-1 に示す 4 種類の試験体（直径 100mm、高さ 200mm）を用いた。南海トラフで採取された間隙充填型の MH 層を想定して、異なる粒度の 3 種類の地盤材料（砂利、砂、粘土）を蒸留水で飽和させた後に、 -15°C の下で凍結させる方法で試験体を作製した。

MH 層から採取されたコアの間隙率（孔隙率）が 40%であることを考慮して、砂は豊浦砂（ $e_{\max}=0.98$ 、 $e_{\min}=0.61$ ）を間隙比 $e=0.72$ （相対密度 $D_r=81\%$ ）、砂利（ $e_{\max}=0.68$ 、 $e_{\min}=0.49$ ）は $e=0.54$ （ $D_r=81\%$ ）、粘土は横浜港沖の海成粘土（液性限界 $w_L=89.6\%$ ）を含水比 $w=200\%$ に調整した。また比較のため、塊状の MH 層や MH のノジュールを想定して、氷単体の試験体も作製した。なお、表-1 に示す一軸圧縮強さ q_u は、地盤工学会基準「岩石の一軸圧縮試験方法」（JGS 2521-2000）に準拠して、温度 $-10^{\circ}\text{C} \sim -15^{\circ}\text{C}$ の下で軸ひずみ速度を $2.5\% \sim 50\%/min$ の範囲で変化させて求めた。

これらの試験体を高さ $H=2\text{m}$ ないし 4m から鉄板（厚さ約 6cm ）上に自由落下させ、衝撃により破碎した試料をふるい分析する作業を数回繰り返した。 2mm のふるいを通過する破碎物は、破碎せずに飛散するので、それ以降の落下作業から省いた。なお、これらの作業は、環境が -5°C 、相対湿度 56% （絶対湿度 1.6g/kg ）に調節された空間で行った。

(2) 破碎の評価方法

破碎の進行状況と破碎の容易性（破碎性）を定量的に表現する指標として、表-2 に示す破碎度 C （crushability）と破碎値 F_R （friability）を用いた。これらの指標は、異なる試料（被破碎体）を形状が同一の単一粒子（初期重量が異なり、連続した粒径分布を持たない状態）から破碎する場合に適用することを考慮して定めた³⁾。

毎回の落下により試料の平均粒径 D_{50} が小さくなる（細粒化される）状況に注目して、2 種類の破碎度 $C1$ と $C3$ を定義した。一方、数回の落下により着目する粒径 d より細粒になった破碎物の重量比が増大する状況は、 $C2$ により把握することができる。砂利の平均粒径 $D_{50,s}=9.83\text{mm}$ より大きい最小のふるい $d=19\text{mm}$ を採用した。また、ASTM 基準（D440-86）を参考に定義した破碎度 $C4$ も、同じく数回の落下により粒度が細くなる状況を表現する指標である。破碎後の試料が最大径のふるいに残留した場合には $C4_{\min}=0$ 、すべてが最小径のふるいを通過した場合には $C4_{\min}=100$ となる。また、破碎度 C を落下で失った位置エネルギーで正規化した値を破碎値 F_R と定義して、落下高さの影響を考慮した。

表-2 破碎の進行状況および容易性を評価する指標

破碎度 C の定義式	物理的な意味	破碎値 F_R の定義式
$C1 = D_{50,i-1}/D_{50,i} - 1$	i 回目の落下前後における平均粒径 D_{50} の減少量を落下後の平均粒径で正規化した値	$F_{R1}=C1/mgH$
$C2 = P_{d,i}$ （粒径 $d=19\text{mm}$ ）	i 回目の落下後における着目する粒径 d の通過質量百分率 P_d （%）	$F_{R2}=C2/mgHN$
$C3 = \log_{10} D_{50,i-1} - \log_{10} D_{50,i}$ $= \log_{10} (C1+1)$	i 回目の落下前後における粒径加積曲線の片対数グラフ上の移動量	$F_{R3}=C3/mgH$
$C4 = 100 - \Sigma$ （正規化ふるい粒径） $\times$ （ $100 \times$ 正規化残留質量）	i 回目の落下後における初期粒度で正規化した相対的な粒度の重心値を 100 から引いた値	$F_{R4}=C4/mgHN$

（注） m ：試験体の初期質量、 g ：重力加速度、 N ：落下回数

(3) 実験の結果

落下回数 N に伴う破砕度 $C1 \sim C4$ の変化を図-1 に示す。まず、毎回の落下による平均粒径の変化を示す破砕度 $C1$ と $C3$ を見ると、粒度が粗い凍結砂利と氷単体は、最初の数回は激しく破砕するが、それ以降は細粒化が進行し難くなる。一方、粒度が細かい凍結砂と凍結粘土の破砕は、最初から低調である。また、 $C1$ よりも $C3$ の方が、細粒化した後の変化も強調されていて読み取りやすい傾向がある。

次に、数回の落下による細粒分の質量増加を示す破砕度 $C2$ と $C4$ を見ると、いずれの試料とも落下回数 N と共に破砕が進行するが、粗い試料ほど容易に細粒化することが分かる。破砕のし易さは、凍結砂利>氷単体>凍結砂>凍結粘土の順である。また、当然のことながら、落下高さ H が大きいほど激しく破砕する。

落下回数 N に伴う破砕値 $F_R1 \sim F_R4$ の変化を図-2 に示す。まず、毎回の落下による平均粒径の低下効率を示す破砕値 F_R1 と F_R3 を見ると、当然のことながら $C1$ と $C3$ と同様の傾向が見られる。また、氷単体の結果を見ると、落下高さ H の影響を受けない固有な関係があることが分かる。

次に、数回の落下による細粒分質量の増加効率を示す破砕値 F_R2 と F_R4 を見ると、凍結砂利と氷単体は落下回数と共に破砕の効率が急激に低下して収束するが、凍結砂や凍結粘土は最初から破砕の効率が低く落下回数 N に余り依存しない。凍結粘土の F_R2 を見ると、落下回数 N と共にむしろ漸増する傾向も認められるが、その理由は分からない。破砕のし易さは、氷単体>凍結砂利>凍結砂>凍結粘土の順となり、破砕度の評価に比べて氷単体と凍結砂利の順序が逆転する。これは、凍結砂利は3~4回の落下で細粒化が収束したのに対して、氷単体は継続的に破砕が進んだからである。また F_R1 と F_R3 と同様に、落下高さ H の影響を受けない固有な関係があることが分かる。

落下回数 N に伴う破砕物の平均粒径 D_{50} の変化を図-3 に示す。土粒子を含まない氷単体は、落下回数 N に伴い継続的に細粒化が進行し、最終的に $D_{50}=5\text{mm}$ に収束する。一方、粗粒の土粒子を含む凍結砂利は、3~4回の落下により土粒子の平均粒径 $D_{50,s}=10\text{mm}$ に収束する。また、細粒の土粒子を含む凍結砂や凍結粘土は、凍結砂利や氷単体に比べて細粒化し難いが、10回程度の落下破砕でも収束はしない。

破砕物の構成粒子に着目して、平均粒径を有する破砕物に含まれる土粒子の個数を比較するために、落下回数 N に伴う破砕物と土粒子の平均粒径の比 $D_{50}/D_{50,s}$ の変化を図-4 に示す。凍結砂利は、3~4回の落下により $D_{50}/D_{50,s}=1$ に収束しており、個々の土粒子が完全に分離された状態（単一粒子氷付着型）にまで破砕が進行したことが分かる。一方、凍結砂と凍結粘土は、10回程度の落下でも個々の破砕物の塊には凍結砂で数百程度、凍結粘土で数千~数万もの土粒子が氷で結合して含まれている状態（複数粒子結合氷含有型）である。

これらの結果より、以下の結論を導くことができる。

- ① 破砕度 C あるいは破砕値 F_R で判断するにせよ、間隙充填型の MH 層の掘削塊を破砕する場合、地盤材料の粒度が粗いほど容易に破砕して細粒化する。
- ② 構成地盤の粒度が 10mm 程度の場合には、容易に単一粒子 MH 付着型にまで破砕することができるが、 1mm 以下の場合には、単一粒子 MH 付着型にまで破砕することが難しく、破砕物は複数粒子結合 MH 含有型に留まる。

3. 比重選別実験

MH 層を掘削し得られた破砕物からの MH の回収効率を検討するため、落下破砕実験によって得られた破砕物の比重選別を行い、氷の回収率や回収物に含まれるずり（土粒子）の混入率を調べる実験を行った。

(1) 実験の方法

落下破砕実験によって得られた破砕物を不凍液（タイホー工業（株）製のクリンビューガラスコートウォッシャー-2500：蒸留水=1：1、比重 0.96）に投入し、浮上物と沈降物をそれぞれ回収した。作業環境は落下破砕実験と

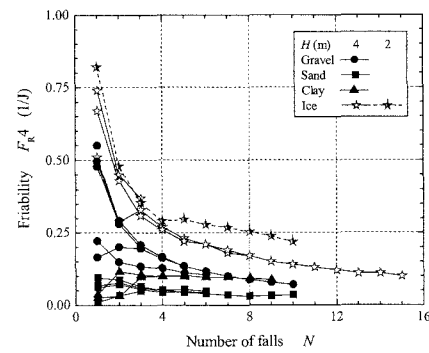
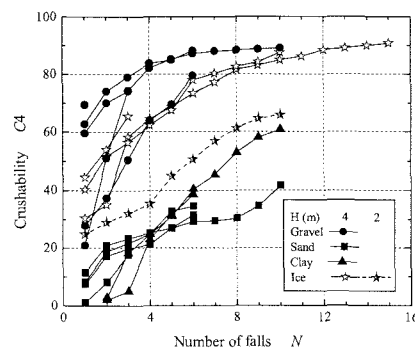
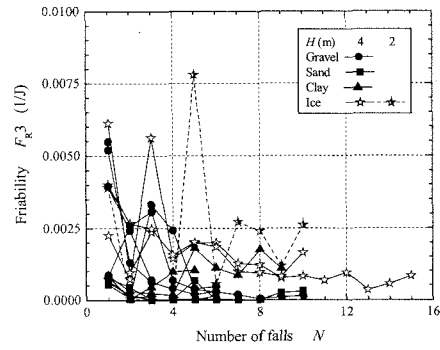
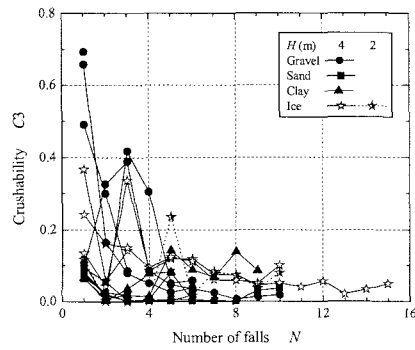
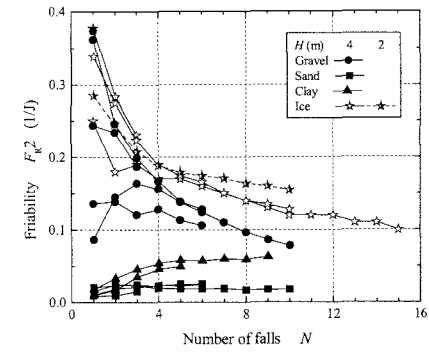
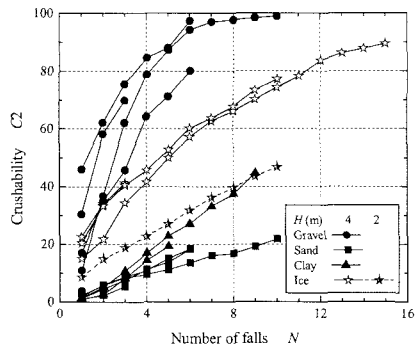
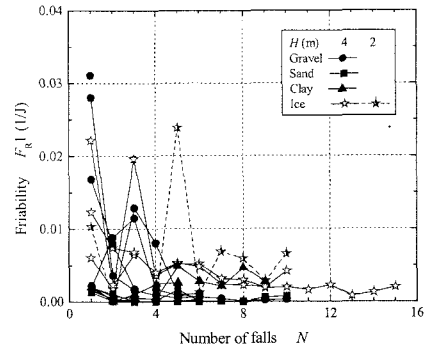
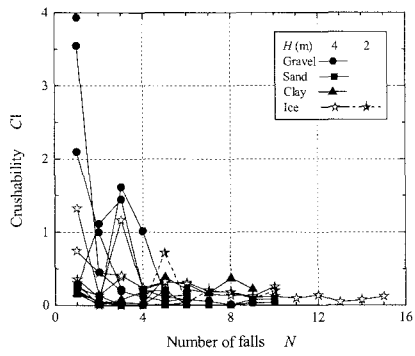


図-1 破砕度 $C1 \sim C4$ と落下回数 N の関係

図-2 破砕値 $F_{R1} \sim F_{R4}$ と落下回数 N の関係

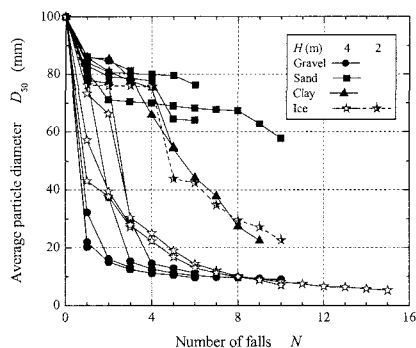


図-3 平均粒径 D_{50} と落下回数 N の関係

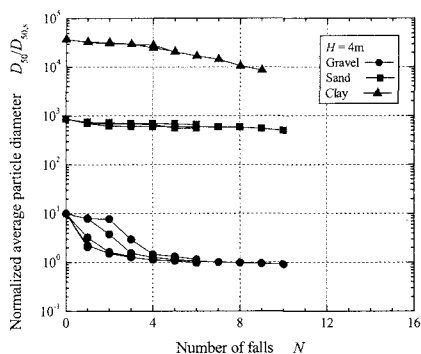


図-4 平均粒径の比 $D_{50}/D_{50,s}$ と落下回数 N の関係

同じく気温 -5℃とした。氷は不凍液に可溶性なため、選別作業を手早く（1分以内）行った。なお、凍結粘土は浮上物がほとんど得られなかったため、凍結砂利と凍結砂のみを対象とした。

(2) 回収効率の評価方法

回収効率を定量的に表現する指標として、表-3に示す氷の回収率 R (Rate of recovery) と浮上物へのずり混入率 R_w (Rate of waste) を用いた。前者は回収対象（氷）の全量に対して実際に回収できた氷の重量比で、高いほど好ましく、後者は回収した浮上物に対して不要な地盤材料の重量比で、低いほど好ましい。 $R1$ と R_w1 が本来の定義だが、実際には氷が不凍液で融解するので、 R を過小評価、 R_w を過大評価してしまう。そこで、沈降物に含まれる土粒子の重量 $W_{soil,S}$ を用いて、それぞれ $R2$ と R_w2 （浮上した氷の融解のみを考慮）ないし $R3$ と R_w3 （沈降した氷の融解も考慮）として算出した。なお、凍結砂では沈降物に付着した不凍液を適切に拭い取ることができなかったため、沈降物の重量 W_S を計測できなかったため $R2$ と R_w2 は算出できなかった。

(3) 実験の結果

落下回数 N に伴う回収率 R とずり混入率 R_w の変化を、それぞれ図-5と図-6に示す。前述したように、氷が不凍液で融解することを考慮していないので、 $R1$ は分子 $W_{ice,F}$ が、 R_w1 は分母 W_F が過小に評価される。そのため、 $R1$ は過小評価、 R_w1 は過大評価されている。また、土粒子サイズにまで破砕が進む凍結砂利では、氷は表面に付着する分だけであるから、含水率 w_{ice} を用いて算出すると個々の砕屑物に含まれる氷の重量を極端に過大評価する。よって、凍結砂は $R3$ と R_w3 で、凍結砂利は $R2$ と R_w2 で評価するのが適切である。

凍結砂利は、落下回数 N と共に回収率 $R2$ もずり混入率 R_w2 も増加し、収束落下回数 ($N=6$) では $R2 \approx 60\%$ 、 $R_w2 \approx 1\%$ となる。このことは、6割程度までの氷を回収することが可能で、その品質（純度）は非常に高い。

凍結砂も、落下回数 N と共に回収率 $R3$ とずり混入率 R_w3 の増加は見られるが、その値は $R3 \approx 1\%$ 、 $R_w3 \approx 0.01\%$

表-3 回収効率を評価する指標

回収率 R の定義式	ずり混入率 R_w の定義式	物理的な意味
$R1 = W_{ice,F}/W_{ice,0}$	$R_w1 = W_{soil,F}/W_F$	本来の定義
$R2 = (W_{ice,0} - W_S + W_{soil,S})/W_{ice,0}$	$R_w2 = W_{soil,F}/(W_{ice,0} - W_S + W_{soil,S} + W_{soil,F})$	浮上した氷の融解を考慮
$R3 = (W_{ice,0} - W_{soil,S} w_{ice})/W_{ice,0}$	$R_w3 = W_{soil,F}/(W_{ice,0} - W_S w_{ice} + W_{soil,F})$	浮上・沈降した氷の融解を考慮

(注) W (重量) に付した下付き文字は、0 (初期)、S (沈降物)、F (浮上物)、ice (氷)、soil (地盤材料) を示す。また、 w_{ice} は含水率 ($=W_{ice,0}/W_{soil,0}$) を表す。

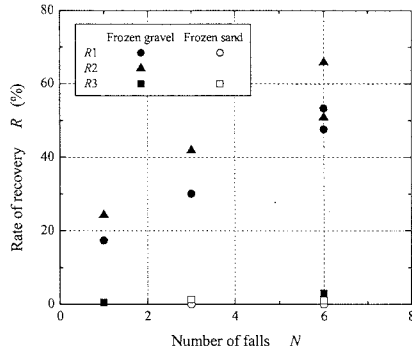


図-5 回収率 R と落下回数 N の関係

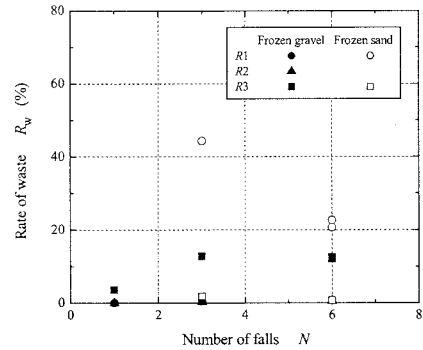


図-6 ずり混入率 R_w と落下回数 N の関係

と極めて低い。よって、ほとんど何も回収されないことを意味する。

これらの結果より、以下の結論を導くことができる。

- ① 構成地盤の粒度が 10mm 程度の場合には、比重選別により 60% 程度の MH 回収が期待できる。さらに回収率を上げるためには、沈殿物の表面に付着する MH を分離する（擦り落とす、掻き落とす）作用が必要である。
- ② 構成地盤の粒度が 1mm 以下の場合には、破砕物が複数粒子結合 MH 含有型に留まる限り比重選別による MH 回収を望むことはできない。まずは単一粒子 MH 付着型にまで破砕することが必須である。

4. まとめ

MH の生産方法として掘削・分別・回収方式を想定して、凍結した地盤材料の落下破砕実験と比重選別実験を行ない、地盤材料の粒度と破砕性や氷の回収効率を検討した。その結果、粒度が粗い場合には、粒子サイズまで破砕して比重選別する方法が MH の回収方法として実現可能性があることが確認できた。しかし、粒度が細かい場合には、衝撃破砕では粒子サイズまで破砕することができず、MH を比重選別で回収するには別の破砕方法が必要ながことが分かった。

実験は大成建設（株）技術センターの設備をお借りした。末筆ながら関係各位に深謝いたします。

参考文献

- 1) 谷 和夫：掘削・分別・回収方式による海底のメタンハイドレートを採掘する方法に関する提案と解決すべき技術課題、第 48 回地盤工学シンポジウム、地盤工学会、pp. 383-388、2003。
- 2) 栗田宣子：メタンハイドレート層の破砕性および分別性に関する基礎的検討、横浜国立大学、修士論文、2004。
- 3) 八木一善、三浦清一：破砕性を有する火山灰土の力学特性とその評価、応用地質、第 44 巻、第 3 号、pp. 142-153、2003。