

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：82627

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02368

研究課題名(和文)メタンハイドレート等の低温物質の移送時における管内閉塞に係る研究

研究課題名(英文)Study on Plugging Caused by Methane Hydrate Formation Inside a Pipe

研究代表者

山本 譲司(YAMAMOTO, Joji)

国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・海上技術安全研究所 海洋開発系・研究員

研究者番号：00586703

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、メタンハイドレート等の低温物質を移送する際、移送管内における氷結条件を明らかにするため、常圧環境下及び高圧環境下で模型試験を実施した。常圧下試験により、管外温度を-4℃まで下げた場合、循環する人工海水はパイプの壁より氷層を形成し閉塞を起こした。熱伝導率の違う管材比較により内部流体への温度伝達に差異が生じるには長時間を要することを確認した。高圧下試験では、ハイドレート生成の安定領域である温度・圧力条件でも、ハイドレートの生成が生じない場合や形成過程が多岐に亘ることが明らかとなった。また人工海水に溶存するガス濃度により、急激にハイドレート化が発生し、管内閉塞が生じる可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

日本周辺海域において存在が確認されているメタンハイドレートは、我が国のエネルギー安定供給に資する有望なエネルギー資源として期待されている。メタンハイドレート等の海底資源を商業規模で生産を行う場合、安定した移送方法を検討する必要がある。移送管内における流体の相変化に伴う凍結等の流動障害に関する条件を明確にすることが重要である。本研究では、実験により海水の凍結条件や再ハイドレート化の形成過程が明らかとなり、安定した移送に必要な環境条件及び懸念要素が明確となった。

研究成果の概要(英文)：We carried out experiments to estimate the situation inside the riser pipe and the risk due to the freezing of the methane hydrate slurry during the transfer process.

In the experiment using the closed-loop experimental apparatus under the atmospheric pressure, ice layers were formed on the tube wall when the temperature outside of the tube was chilled until -4°C. And, two different materials, stainless-steel and brass, were used to investigate the influence of pipe material on the heat transfer from the outside to the inner fluid. As a result, no significant differences between the pipe materials were shown in the heat transfer from the outside temperature.

In the experiment under high-pressure conditions, the hydrate growth process differs depending on the temperature-pressure conditions and gas control. It is assumed that the formation of gas hydrate requires enough amount of gas includes dissolved gas in seawater in addition to temperature-pressure conditions.

研究分野：海洋環境工学

キーワード：メタンハイドレート 管内閉塞 低温物質 資源開発 ループ試験 高圧試験

1. 研究開始当初の背景

日本周辺海域において存在が確認されているメタンハイドレートは、我が国のエネルギー安定供給に資する有望なエネルギー資源として期待されている。平成 25 年 4 月及び平成 30 年 5 月に閣議決定された海洋基本計画に基づき、平成 30 年代後半に民間企業が主導する商業化に向けたプロジェクトが開始されることを目指し、開発が推進されている。日本周辺海域のメタンハイドレートは、海底下より数百mの砂層に存在する「砂層型」とおよそ海底下 100m 以浅にガストムニーとして存在する「表層型」が確認されている。砂層型メタンハイドレートは、減圧法による海底でガス化する回収方法を用い平成 24 年度より第 1 回海洋産出試験が、平成 28 年度より第 2 回海洋産出試験が実施された。¹⁾一方、表層型メタンハイドレートは、地理的条件や海気象条件等から砂層型メタンハイドレートで検討されている減圧法、加熱法といった海底でガス化する方法ではなく、泥質に混在したハイドレート化した状態で海水とともに海底を移送し揚上する方法や海底パイプラインにより移送する方法が検討されている。²⁾

移送技術については、1930 年代より天然ガスパイプラインのフローアシュアランス（管内閉塞防止）の観点から研究されており、特に相平衡（熱力学的な生成・分解条件）については、詳細に調べられている。³⁾砂層型メタンハイドレートの海洋産出試験では、メタンの気泡が周辺環境により再ハイドレート化し流動阻害を生じさせる懸念について数値解析による検討がなされている。⁴⁾しかし、ハイドレート化した状態で海水とともに移送する場合には、移送中に相変化が生じ体積膨張に伴う温度の低下が生じ、ガス化したメタンの再ハイドレート化や断熱膨張による海水の凍結現象（断熱冷却）が発生する懸念があるが、その実態については、未だ明らかになっていない。

研究代表者の所属グループでは、海底資源を対象とした揚鉦時における固気液三相の内部流評価技術の研究を行ってきた。⁵⁾また、大型高圧実験施設（高圧タンク）を用いた CO₂ハイドレートの分解挙動について実験を行った実績がある。⁶⁾しかし、管内での相変化による影響についての評価には至っていない。

メタンハイドレート等の海底資源を商業規模で生産を行う場合、安定した移送方法を検討する必要があり、移送管内における凍結等の流体の相変化に伴う流動阻害に関する条件を明確にすることが重要である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、メタンハイドレート等の海底資源を移送する際の相変化に伴う移送管内における流動阻害の条件を明らかにすることにある。

本研究では、移送管内の相変化に伴う影響について常圧環境下及び高圧環境下での試験により明らかにする。本研究で得られる成果は、メタンハイドレートの商業生産に向け安定した移送方法の検討に必要な不可欠であり、また今後海洋資源開発のフィールドとして注目されている大水深海域や氷海域では、高圧環境下、低水温環境下、長距離移送など、厳しい環境条件において資源を移送することが想定され、移送管内の流動阻害が課題となるため、相変化による流動阻害条件を明らかにすることの意義は大きいものであると考える。

3. 研究の方法

本研究では、メタンハイドレート等の海底資源を移送する際の移送管内における氷結条件を明らかにするため、常圧環境下及び高圧環境下において模型試験を実施した。

(1) 常圧環境下試験

常圧環境化試験では、2重管を使用したループ試験装置（図 1）を作成し、移送管内外の流体速度、温度、塩分濃度、及び伝熱特性の条件の違いによる内部流阻害状況について、温度、圧力変化及び、管内観測にて明らかにした。また、管内閉塞の条件として、海底土砂とハイドレートとの親和性による影響についても、模擬粒子を用いた検討を実施した。

ループ試験では、安全上の観点からメタンハイドレートの代替として炭酸水を使用し、試験流体は、清水及び人工海水を用いた。管外温度及び管内塩分は、表層型メタンハイドレートが発見されている日本海の水深 1,000m から表層までを想定し設定した。移送管の伝熱特性を確認する試験では、熱伝導率が大きく異なる素材として、ステンレススチール（熱伝導率 17W/m・K）と銅合金（112W/m・K）の 2 種類を用いた。管厚はループ試験時には 2.5mm を、追加試験では 2.5mm と実際に油ガス田分野で使用されている 25.4mm の 2 種類を用いた。ループ試験装置には、3 ヶ所のデータ計測エリアを設け、外環境条件や管内流速の違いによる管内の温度変化と圧力変化を計測し、管内の状態変化をビデオ撮影した。管内の観測部分は、ウォータージャケットを使用し、視認性の向上を図った。

試験は、チラーユニットを用いて管外温度を 1 度に保ち、管内水温が 5 度から 1 度に変化する時系列変化を計測した。試験ケースとして、清水及び人工海水を用い、管内の流体流速 0.0、0.2、0.3、0.5m³/h、炭酸水の有無、内管素材の違いについて実施した。炭酸水のスラリー濃度は、別事業にて検討している揚収計画を踏まえ、vol.5%又は 10%とした。炭酸水を使用した試

験では、氷の溶解に伴い炭酸ガスと水に相変化することによる管内環境の変化を計測及び観測した。加えて、管内の人工海水が凍結する条件を確認するため、内外管の流体を循環させた状態で、外側の流体温度を1時間に1度下げ、管内流体が凍結するまで実施した。

管素材の違いに係る試験については、新たに試験装置(図2)を作成し、追加試験を行った。追加試験では、外部流体温度を5度に保ち、パイプユニット内の流体温度が1度から5度になるまでの時間を計測した。パイプユニット内の水温計測は、テストピースの中央表面部とテストピースから高さ100mm(実スケール管の中心部を想定)の2カ所で計測を行った。

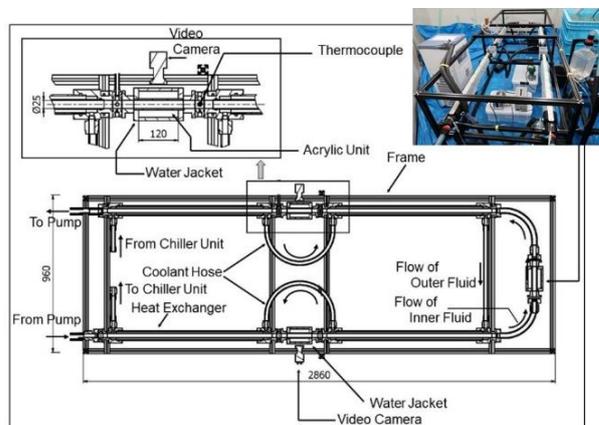


図1 ループ試験装置図及び写真

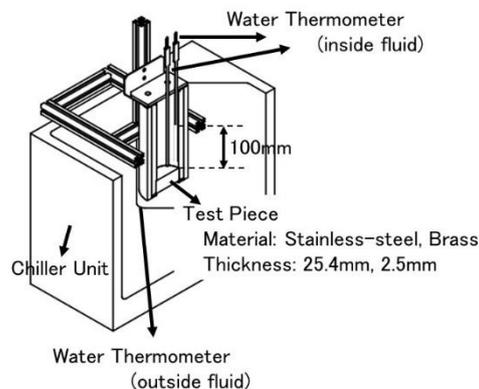


図2 素材影響試験装置

(2) 高圧環境下試験

ハイドレート移送時に溶解し固液2相(ハイドレートと海水)から固気液3相を経て気液2相になった状態を想定し、気液面におけるガスハイドレートの再生成と分離過程について把握するため、高圧環境下にてビデオカメラによる観測を行った。制作した高圧試験装置(図3)の最大圧力と内部容積はそれぞれ20MPaG(MPaGはゲージ圧力)、100mLで、観測窓にはカメラの視認性を考慮し耐圧サファイアガラスを使用した。圧力チャンバーは、カメラ観測用の2つのサファイア窓、ガス供給・排出部、内部温度計測部の計6つのポートで構成されている。安全上のため、ハイドレートの材料は、純水と二酸化炭素ガスを使用した。

試験は、チャンバーに50mLの純水を入れ、CO₂ガスを注入しCO₂ハイドレートが安定して存在する温度と圧力領域にて少量のガスを排出する方法で、ハイドレートの生成過程の観測を行った。試験室の温度は、2±1.5°Cになるように制御した。

追加試験として、内部流が存在する際のハイドレート生成を観測するため、シーソー型架台(水平状態から最大±30度まで傾斜可能)を作成し観測を行った。

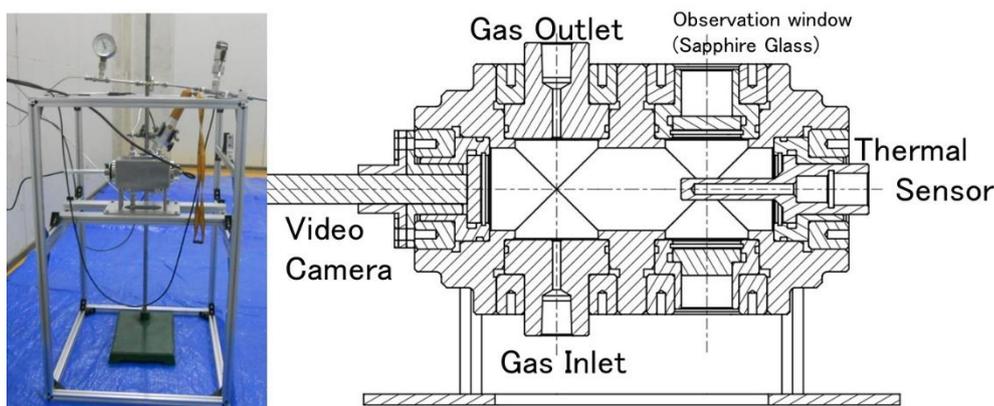


図3 高圧試験装置図及び写真

4. 研究成果

(1) 常圧環境下試験

① ループ試験

外部環境に起因する移送管内の影響に関する基礎的なデータを取得することを目的として、熱交換器を組み込んだループ型流動試験装置を作成し試験を行った。試験結果により、内部流がある場合、管外温度が管内温度に及ぼす影響は、内部流速の違いに大きな差異はないことが示唆された。一方、管内に流れが無い場合は、外部温度の影響を受けやすい結果が示された。炭酸水

を用いた試験では、管内温度が -1.5°C まで減少したものの、海水に含まれる真水が凍り始める約 -1.8°C には至らず、管内の流れ $0.5\text{m}^3/\text{h}$ 、スラリー濃度 $10\text{vol.}\%$ 、管外温度 1°C の条件では、管内閉塞は生じないことが示唆された。この条件は、現在計画されている移送条件と同程度である。

外部温度を -4°C まで下げた場合、内部流がある状態でも人工海水の温度が -1.8°C 以下となり、管内の壁面より氷層が形成され管内閉塞を起こした(図4,5)。通常、海中では外部環境が -4°C に達することは無いが、表層型メタンハイドレートが存在する日本海側の冬季における海上の気温は -4°C 以下になる可能性もあり、海中から海上への移送時には、管内閉塞を起こす条件となり得る。

また、ループ試験では、管材質の違いによる外部温度からの熱伝達に差異は認められなかった。これは、試験に用いた管厚が影響していると考えられるため、油ガス分野で使用されている生産用ライザー管相当の管厚(25mm程度)を使用した追加試験を実施した。

ビデオ観測により、管内の氷の生成には、管内流体に含まれる錆等の懸濁物が、氷の核生成を引き起こす場合があることが示唆された(図6)。また、スラリー循環中に氷の凝集により管内閉塞が発生することも確認された(図7)。

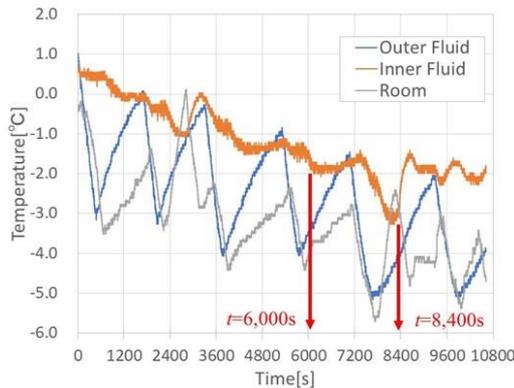


図4 管内閉塞試験時の時系列結果



図5 管内閉塞写真

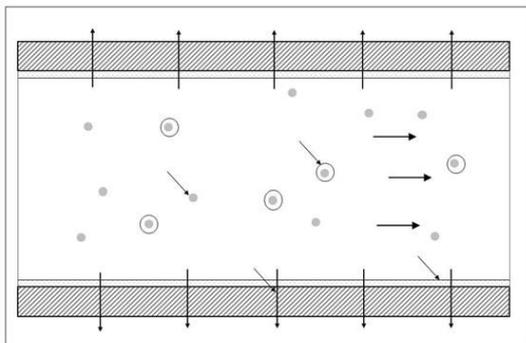


図6 懸濁物による氷の核生成イメージ図

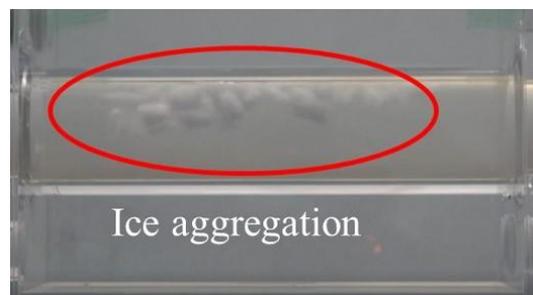


図7 氷の凝集写真

② 材質影響試験 (追加試験)

熱伝導率が高い銅合金の方がステンレスより、 5°C になる時間は 25.4mm 厚の供試体で約19%程度早い結果となった(図8)。今回の試験結果により、実際にメタンハイドレートを海底から海上に移送した場合、流速 5.0m/s で $1,000\text{m}$ を移送するには200秒を有する。このような短時間では、管の材質の違いは、外部環境における内部流体の温度変化に大きく影響することはないと思われる。ただし、長時間内部流体が停滞する状況が生じた場合は、熱伝導率の低い素材を選ぶ方が良く考えられる。

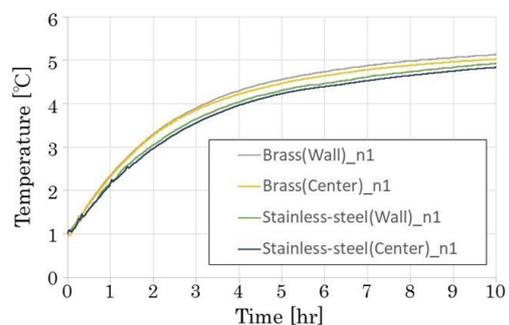


図8 材質の違いによる管内温度結果

(2) 高圧環境下試験

高圧環境下におけるガスハイドレートの形成過程を確認するとともに、再ハイドレート化による管内閉塞について確認した。 CO_2 ハイドレートが形成される安定領域において複数回形成過程を観測した。観測結果より、ハイドレートの安定領域であっても、温度・圧力条件とガス制御により、ハイドレートが形成されないケースや、結晶化を繰り返し成長するケース(図9 ケース2)、気泡が発生し気泡が相互に吸着し成長する

ケース (図 9 ケース 3)、帯状の結晶が成長するケース (図 9 ケース 4) など形成過程が異なることが観測された。ガスハイドレートは、熱力学的に安定して存在する温度-圧力領域でチャンパーに十分な量のガスを注入することによって形成された。この十分なガス量には、海水に溶存するガスも含まれる。溶存ガスが気化する温度-圧力条件になった場合、急速な再ハイドレート化が発生し、一瞬でチャンパー内が凍結する現象も確認された。

本試験により、管内閉塞の条件を明らかにするためには、溶存ガスの挙動も重要な要素となることが示唆された。

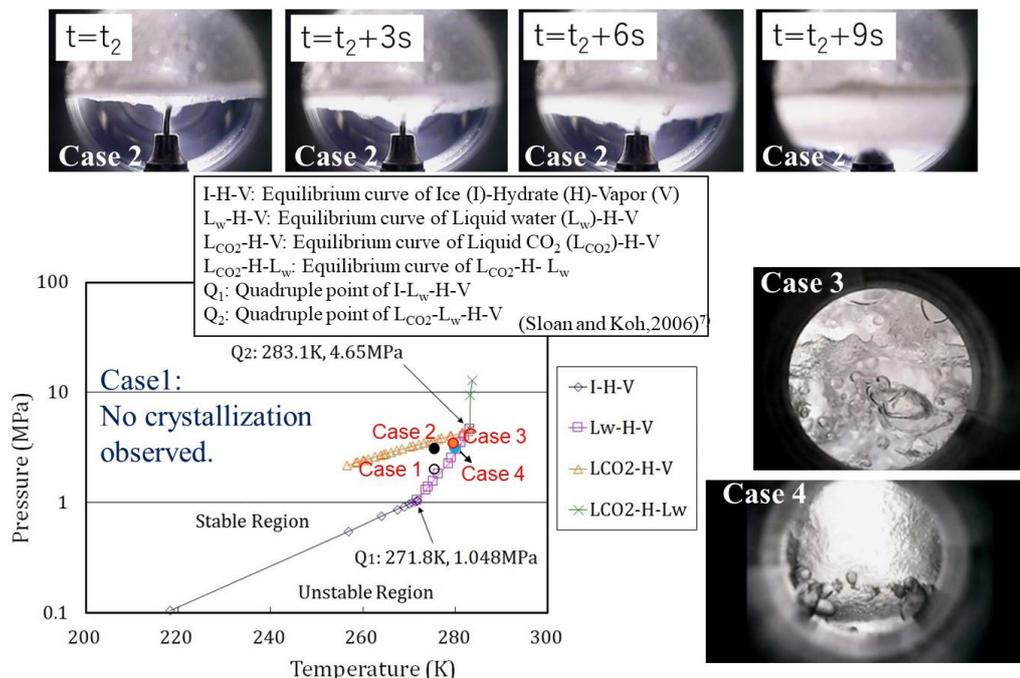


図 9 高圧環境下試験におけるハイドレートの形成事例

以上の結果より、メタンハイドレート等の海底資源を移送する際の流動障害の条件が明らかとなり、大水深海域や氷海域のような高圧環境下、低水温環境下の厳しい環境条件において海洋資源を移送する際の管内閉塞のリスク検討に資する情報が得られた。

また、メタンハイドレートの移送に際しては、新たに溶存ガスによる影響についても検討する必要があることが示唆された。

<引用文献>

- 1) JOGMEC ホームページ <http://www.jogmec.go.jp/news/release/content/300335970.pdf>
- 2) 経済産業省ホームページ
http://www.meti.go.jp/committee/summary/0004108/pdf/033_06_00.pdf
- 3) Sloan, E. D. Jr. : Clathrate Hydrates of Natural Gases, 2nd ed., Marcel Dekker, pp. 7-19, 1998
- 4) J. Sato, *et al.* : Cohesion force measurement of methane hydrate and numerical simulation of rising bubbles covered with a hydrate membrane within a contracting pipe, Energy & Fluid, Vol. 30(9), pp. 7100-7107, 2016
- 5) S. Takano, *et al.* : Experimental studies of Air-lift pump for deep sea mining, International Conference on Ocean, Offshore and Arctic Engineering, OMAE2018, 2018
- 6) Y. Nakajima, *et al.* : Evaluation of Dissolution Rate of CO₂ Drops with Hydrate Films for CO₂ Ocean Storage, Proceedings of 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies (GHGT-8), 2006
- 7) Sloan, E. D. and Koh, C. A., Clathrate Hydrates of Natural Gases, pp. 379-387, CRC Press, 3rd ed., 2008

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 中島康晴 |
| 2. 発表標題 Experimental Study on Plugging Caused by Methane Hydrate Formation in Pipes |
| 3. 学会等名 Global OCEANS 2020 (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 山本讓司 |
| 2. 発表標題 Experimental Study on Plugging inside a Pipe using a Substitute for Methane Hydrate |
| 3. 学会等名 40th International Conference on Ocean, Offshore and Arctic Engineering (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 中島康晴 |
| 2. 発表標題 Observation of gas hydrate formation at gas-liquid interface |
| 3. 学会等名 International Conference on Power Engineering (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 山本讓司 |
| 2. 発表標題 Preliminary Experiments for Construction of an Evaluation Model for Methane Hydrate Transportation |
| 3. 学会等名 41th International Conference on Ocean, Offshore and Arctic Engineering (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 中島康晴 |
| 2. 発表標題 Gas Hydrate Formation and Dissociation under Static and Dynamic Conditions |
| 3. 学会等名 The 13th Pacific Symposium on Fluid Visualization and Image Processing (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|--|---|----|
| 研究分担者 | 中島 康晴 (NAKAJIMA Yasuharu) (30344237) | 国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局等・研究員 (82627) | |
| 研究分担者 | 山本 マルシオ (YAMAMOTO Marcio) (10608631) | 国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局等・研究員 (82627) | |
| 研究分担者 | 高野 慧 (TAKANO Satoru) (90636820) | 国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局等・研究員 (82627) | |
| 研究分担者 | 大坪 和久 (OTSUBO Kazuhisa) (50435773) | 国立研究開発法人海上・港湾・航空技術研究所・その他部局等・研究員 (82627) | |

6. 研究組織（つづき）

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|------------------------------|-----------------------|----|
| 研究協力者 | 天満 則夫 (TEMMA Norio) | | |
| 研究協力者 | 小野 正夫 (ONO Masao) | | |
| 研究協力者 | 金田 成雄 (KANADA Shigeo) | | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
| | |