

受付 ID	17a58
分野	物質科学

CO₂ハイドレート内における分子拡散挙動の解明に向けた

分子動力学シミュレーション

Molecular dynamics simulation for the elucidation of the molecular diffusion behavior in the CO₂ hydrate

阿部豊

システム情報系

1. 研究目的

地球温暖化対策技術として火力発電所等から回収した CO₂ を地中および海洋に貯留する CCS 技術が注目を集めている。低温高压条件を満たす深海では、貯留した CO₂ と海水との界面にハイドレートと呼ばれる膜状の包接水和物が生成する。このハイドレート膜により大量の CO₂ を安定して長期間の貯留が可能となると考えられている。しかしながら CO₂ ハイドレートの生成・成長過程については不明な点が多く残されており、ハイドレートを用いた CCS 技術の実用に至っていない。本研究グループの最終目標は、CO₂ ハイドレートの生成・成長メカニズムを解明し、その経時変化を予測可能なモデルを構築することである。

本プロジェクトは、ハイドレートの成長過程を定量的に予測するために、ハイドレート内の分子拡散挙動を解明し、信頼できる定量的な精度での分子拡散係数を取得することを目的とする。具体的には、CO₂ ハイドレートの構成分子である H₂O 分子と CO₂ 分子の拡散挙動を、分子動力学シミュレーションにより解析を行う。

2. 研究成果の内容

ハイドレート内の骨格構造には少なくとも一つの分子欠損が必要であることが知られている。そこで、以下の3条件に分けてシミュレーションを行った。

1. H₂O 分子を計算体系から除去する条件
2. CO₂ 分子を計算体系から除去する条件
3. 上記 1. と 2. の両条件を組み合わせた条件

計算結果を以下に示す。図 1 は初期構造を 8 倍に拡大した CO₂ ハイドレートを模擬した初期の計算体系を示す。直線が水分子による水素結合を、球形状が CO₂ 分子を示している。図 2 は H₂O 分子を 8 個取り除いた条件に加えて、取り除く CO₂ 分子の個数を振って計算した分子拡散係数の推移を示している。この結果、一定の CO₂ 分子欠損を境界として構造が崩壊し、H₂O 分子ならびに CO₂ 分子が局所に集中する挙動を観測した。各条件において、分子のトラジェクトリーから分子拡散係数を算出すると、ハイドレート構造が維持される条件においては 10^{-12} m²/s 近傍を推移し、構造が崩壊すると 10^{-9} m²/s まで急上昇し、水中における CO₂ の拡散係数と同程度の値を示した。

3. 学際共同利用として実施した意義

本研究グループの計算体系で大規模な数値計算を行うに当たり、数十ノードを伴うような大規模な並列系計算ではなく、多くの CPU を実装する単一ノードで計算を実行することが求められる。この理由から、コア数が最も多いスーパーコンピュータである Oakforest-PACS が最適であり、必然的に筑波大学計算機センターが所有する Oakforest-PACS の利用申請に至った。本制度により、これまで明らかとなっていなかった分子拡散挙動と分子構造の相関を取得することに成功した。

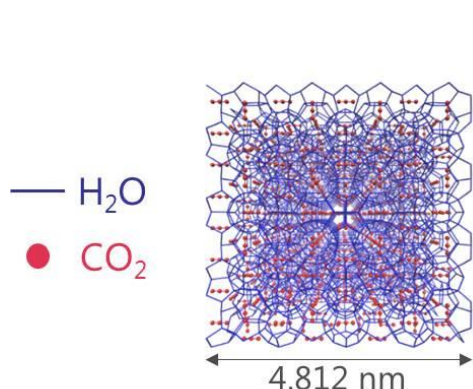


図1 初期計算体系

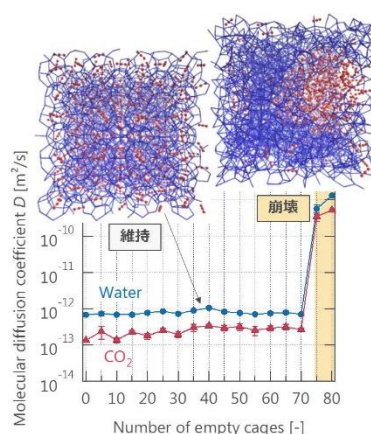


図2 CO₂分子の欠損率と分子拡散係数の関係

4. 今後の展望

本研究グループは実際にハイドレートを生成し、その成長過程を可視化観測する実験を行っている。実験ではCO₂ハイドレート膜を介したCO₂の水に対する溶解挙動を観測している。このマクロスケールなCO₂輸送と、さらに単位格子を拡張した系を作成し、大規模な長時間計算により推定したミクロスケールなCO₂輸送を随時比較することで、シミュレーションにより求めた分子拡散係数の妥当性を評価する。以上より、ミクロスケールの分子計算のみならず、マクロスケールの化学工学分野や海洋分野で得られた実験結果と常に比較を行うことで、CO₂ハイドレートの成長に対して、マルチスケールのアプローチを行う。

5. 成果発表

(1) 学術論文

Xiao Ma, Norifumi Yamamoto, Yutaka Abe, “Development of a Kinetic Model for Clathrate Hydrate Film Growth in Combination with Molecular Dynamics Simulations”, *AIChE J.*, 2017, Submitted.

(2) 学会発表

Xiao Ma, Norifumi Yamamoto, Yutaka Abe, “ELUCIDATION OF MOLECULAR DIFFUSION BEHAVIOR IN A CO₂ CLATHRATE HYDRATE FILM BASED ON MOLECULAR DYNAMICS SIMULATIONS”, *Proc. Ninth JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference(TFEC)-9*, Okinawa, Oct. 2017, TFEC9-1012

馬駿、山本典史、阿部豊、「分子動力学シミュレーションに基づくCO₂ハイドレート成長予測モデルの構築」、第54回日本伝熱学会、大宮、2017年5月

(3) その他

使用計算機	使用計算機 に○	配分リソース*	
		当初配分	追加配分
HA-PACS/TCA			
COMA			
Oakforest-PACS	○	40,000	
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。			