

審査の結果の要旨

氏名 龐 姜涛

本論文は「Molecular Scale Simulation of Fluid-Hydrate-Mineral Interactions with Application to Petroleum Engineering (流体-ハイドレート-鉱物相互作用の分子スケールシミュレーションとその石油工学への応用)」と題し、英文で記述されている。石油・天然ガスのエネルギー資源は、持続可能な社会を実現していく上で重要な資源であるが、一方で化石燃料の消費による CO₂ 排出が地球温暖化の一因となっている。そのため、化石燃料を使用しながら低炭素社会を実現する技術として、CCS (二酸化炭素回収貯留) やガスハイドレート資源開発が期待されている。これらは地下の地層を対象にした石油工学の応用技術であるが、地層孔隙内での流体-ハイドレート-鉱物の相互作用 (Fluid-Hydrate-Mineral Interaction) は科学的に未解明な点が多い。本研究では、分子スケールのシミュレーションによってこの相互作用を把握し、現場技術の開発促進に資する知見を得ることを目的としている。

本論文は 6 つの章で構成される。

第 1 章では、CCS とガスハイドレート資源開発の現状と課題、これらの技術と分子スケールのシミュレーション研究の関連性、本研究の目的、本論文の構成が述べられている。

第 2 章では、分子動力学とグランドカノニカルモンテカルロ法 (GCMC: grand canonical Monte Carlo) の概要、および本研究の計算で用いた力場、水モデル、各パラメータが記述されている。

第 3 章では、CCS における流体-鉱物間の相互作用に関する研究が行われている。CCS での CO₂ 貯留効率の改善、貯留モニタリング技術の開発には、坑井から圧入された CO₂ が地層水・粘土鉱物とどのように相互作用するかを知ることが重要である。CO₂-水-カオリナイトの系に対して分子動力学と GCMC による分子シミュレーションを行った結果、非膨潤性の粘土鉱物であるカオリナイトの新しい膨潤メカニズムが提唱された。カオリナイト表面が異なる濡れ性 (親水性と疎水性) を持つことから、従来は水和と浸透圧効果だけで膨潤すると考えられていたカオリナイトが、分子層間への CO₂ 吸着により大きく膨潤するという新知見である。さらに、CO₂ 吸着による膨潤ひずみの大きさが間隙圧力の上昇による歪みよりも大幅に大きくなる可能性も示された。これは、CCS の現場において地層ひずみを測定することによって坑井内の CO₂ 漏出を監視する

という新技術の実現可能性を示唆している。

第4章では、流体-ハイドレートの相互作用に関する研究として、分子動力学を用いてメタンハイドレートとエタンハイドレートの相平衡曲線(相境界)が計算されている。TIP4P/ICE と OPLS-AA モデルを用いたシミュレーションで、ハイドレート相-水相-気相 (H-Lw-V) の初期状態からハイドレートが成長する温度と分解する温度を検知するという方法を適用し、相平衡曲線の予測に成功した。エタンハイドレートの場合には圧力が高くなるとエタンの液化が生じて相挙動が複雑になるが、NPH アンサンブルシミュレーションの方法を適用して、妥当な予測結果を導くことに成功している。

第5章では、メタン-エタン2成分系のガスハイドレートにおける特異な構造転移の現象が詳細に検討されている。純粋なメタンとエタンは構造 I (sI) 型ハイドレートを作ることがわかっているが、その混合物は特定の組成で構造 II (sII) 型ハイドレートを形成する場合がある。分子動力学と GCMC による計算を行い、メタン-エタン2成分系で sII 型ハイドレートが sI 型ハイドレートに構造転移する際に、15面体(主に $5^{12}6^3$) ケージがブリッジングの重要な役割を担うことを見出した。また、ハイドレート生成エネルギーとメタン組成の関係についての分析も行われ、温度が低く圧力が高いほど sI 型ハイドレートの成長に有利であること、ハイドレートケージ内のゲスト分子のエタンとメタンの比率によって sI 型、sII 型ハイドレートが生じることなどが示されている。

第6章では、結論と今後の課題・方向性がまとめられている。

以上を要するに、本研究では、分子スケールシミュレーションを石油工学に応用し、 CO_2 -水-粘土鉱物(カオリナイト)の系、およびハイドレート-水-メタン/エタンの系における各相間の相互作用が詳細に検討されている。第3章では、カオリナイトの新しい膨潤メカニズムの発見という学術的に優れた成果に加えて、CCSの現場で CO_2 吸着による地層ひずみの測定によって CO_2 漏出の監視が可能ではないかという実用的に有用な成果も得られている。第4章と第5章では、メタン-エタン2成分系の混合ガスハイドレートのsII型とsI型の構造転移に関する学術的に新たな知見が得られている。現在はsI型構造を持つメタンハイドレートの開発研究が盛んに行われているが、今後はエタン、プロパンなどを含む熱分解起源の混合ガスハイドレート(sI型とsII型が共存するハイドレート)の開発も重要である。本研究成果は、このような新しい型のハイドレート開発研究やパイプライン中のハイドレート抑制対策の検討などにも応用が期待される。このように、本論文はシステム創成学専攻の重点研究分野の1つであるグローバル循環システム分野の研究として高く評価される。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。