

審査の結果の要旨

氏名 曹金榮

本論文は「Molecular Scale Simulation Study on Adsorption and Phase Behavior in Organic Nanopores of Unconventional Resources (非在来型資源の有機物ナノ孔隙内の吸着と相挙動に関する分子スケールの数値計算研究)」と題し、英文で記述されている。非在来型資源のシェールガス・オイルと炭層メタン (CBM: Coalbed Methane) は、世界が持続可能な社会を維持していくための重要なエネルギー資源であるが、これらが賦存する地層では有機物のナノ孔隙内に多量の炭化水素分子が吸着する形態で存在している。本研究では、分子スケールの数値計算によって、ケロジェンや石炭などの有機物のナノ孔隙内の吸着・脱着現象と相挙動を把握し、その資源量評価や回収率の向上に役立つ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、シェール層内のケロジェンナノ孔隙の存在、実フィールドのガス生産挙動と有機物ナノ孔隙内のガス吸着・相挙動の関連性、ナノ孔隙内流体の分子スケールのシミュレーションに関する先行研究のレビューを踏まえて、本研究の目的、論文の構成が述べられている。

第 2 章では、研究手法として用いた分子動力学法 (MD: Molecular Dynamics) 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、および計算で用いた炭化水素、CO₂、石墨、ケロジェン等の各分子モデルの形状とパラメータが記述されている。

第 3 章では、シェール岩石のケロジェンナノ孔隙におけるガスの吸着・脱着現象が検討されている。先行研究の分子スケール計算では、ケロジェンナノ孔隙を石墨板に挟まれた空間とみなしたモデルによるメタン吸着等温線は報告されていたが、高圧の領域でメタン吸着量が実際よりも低く推定されるという弱点があった。本研究では、ケロジェンに挟まれた現実的な隙間モデルを構築して、隙間内のメタン密度分布の計算が行われた。その計算結果から、隙間内の領域が 1) フリーガス帯 (吸着されていないメタンが存在する領域)、2) メタン吸着帯 (ケロジェン表面にメタンが高濃度で吸着して存在する領域)、3) メタン吸収帯 (ケロジェン内部の微細孔隙にメタンが侵入して存在する領域) の 3 つの領域に分類されることが示され、実験結果と符合するメタン吸着等温線が求められた。さらに、ケロジェンナノ孔隙に対する吸着等温線をシェール岩石の孔隙径分布・全有機炭素のデータと組み合わせることにより、シェール層内のメタン吸着等温

線を求める新たな方法が提案された。この手法を適用することによって、先行研究で報告されている Marcellus や Eagle Ford シェールのメタン吸着等温線の実験結果を適切に予測できることが示された。

第 4 章では、シェール層の多成分炭化水素の相挙動の特徴を模擬したメタン/ n -ブタン 2 成分混合物に対する GCMC シミュレーションによって、ナノ孔隙内の相挙動が検討されている。ここでは、ナノ孔隙内の露点圧力と沸点圧力を求める新たな手法が構築された。計算データの解析から、炭化水素の固体表面への吸着選択性の違いによって生じる凝縮現象がナノ孔隙における多成分炭化水素の露点圧力と沸点圧力を大きく変化させることが詳細に報告されている。石墨板に挟まれた 10 nm の隙間内における 2 成分混合物の相包絡線 (P-X 図) の計算では、隙間内の相包絡線が通常の状態方程式から予測される相包絡線と大きく異なること、レトログレート凝縮現象 (圧力の低下に伴って液化が進行する現象) についても予測が可能であることが示された。今後の研究で露点圧力・沸点圧力と隙間径の関係が明らかにされれば、実フィールドでのガスコンデンセートの生産挙動の予測や増進回収について、ナノ孔隙における炭化水素の吸着選択性の観点から新たな手法が生まれることが期待される。

第 5 章では、CO₂等を石炭層に圧入して吸着メタンを回収する炭層メタン増進回収法 (ECBMR: Enhanced Coalbed Methane Recovery) について、分子シミュレーションによる検討が行われている。メタン回収プロセスは、石炭マトリクス (タイプ III ケロジエンとメタンで満たされたボックス) と炭層亀裂に存在するガス (CO₂, N₂, または CO₂-N₂ 混合ガス) を連結した系でモデル化され、MD シミュレーションで、各ガス注入によるメタン回収率、石炭の膨潤、および膨潤による浸透率低下が検討された。計算されたメタン回収率は、CO₂, N₂, CO₂-N₂ 混合ガス注入に対して、それぞれ約 80%, 54%, 71% であり、CO₂ 注入の場合が最大値を示したが、この場合炭層の孔隙率を 16% とすると石炭マトリクスは 17% 膨潤し、浸透率は初期の浸透率の 0.4% まで低下することがわかった。以上の検討結果から、CO₂-N₂ 混合ガスの圧入が石炭の膨潤による浸透率低下を引き起こすことなくメタン回収率を高める最良の方法であることが示された。

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、本論文の大きな特徴は、ナノ孔隙内の現象が生産挙動に大きく影響する非在来型資源の評価に分子スケールの数値計算を適用したことである。第 3 章でのシェール層内のメタン吸着等温線を求める新たな方法の提案、第 4 章でのナノ孔隙内の露点圧力と沸点圧力を求める新たな手法の構築、およびナノ孔隙内でのガス吸着の選択性と相挙動の関連性の検討、第 5 章での炭層メタン回収での CO₂-N₂ 混合ガスの有効性の提示は、今後の非在来型資源の開発現場に応用できる貴重な成果である。

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。