

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。低温高圧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 の安定かつ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。

2. 研究成果の内容

本プロジェクトでは、図1のように CO₂ ハイドレートの分子構造を再現し、構造を構成する CO₂ および H₂O 分子の挙動を計算することで、内部における分子の輸送現象を解明することを目的としている。図2に示すように CO₂ ハイドレートは H₂O 分子から構成される籠状の構造に CO₂ 分子が捕らわれたような形をしているが、実際には両分子の欠損が確認されている。この理想状態と実際に存在する分子の数の比を占有率と呼ぶが、この占有率の特定には至っていない。

そこで、本研究では CO₂ および H₂O 分子の占有率が分子の拡散現象に及ぼす影響を調査した。

その結果、図3に示すように、ハイドレート中の CO₂ 分子の占有率が 86%程度、あるいは H₂O 分子の占有率が 98.7%程度に低下するとハイドレートの構造が崩壊する結果を得た。また、ハイドレート内部における分子の自己拡散係数は CO₂ 分子の占有率に比べて H₂O 分子の占有率に強く依存する結果を得た。

また、温度の影響を調べるため二種類の H₂O 分子モデルを使用し、各々温度をパラメータとしてシミュレーションを実施した。その結果、図4に示すように CO₂ ハイドレートの構造が崩壊する温度は異なるものの、構造が維持されている状況では両モデルとも分子拡散係数の温度への依存性は見られなかった。

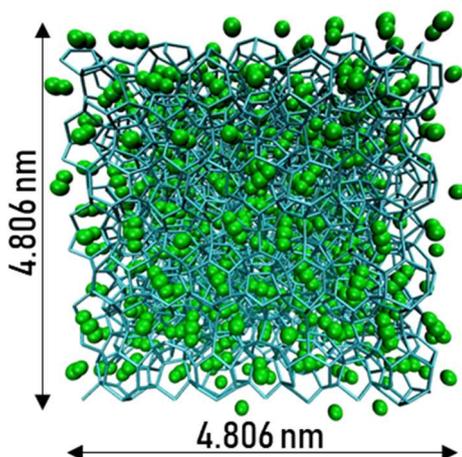


図1 計算対象の系

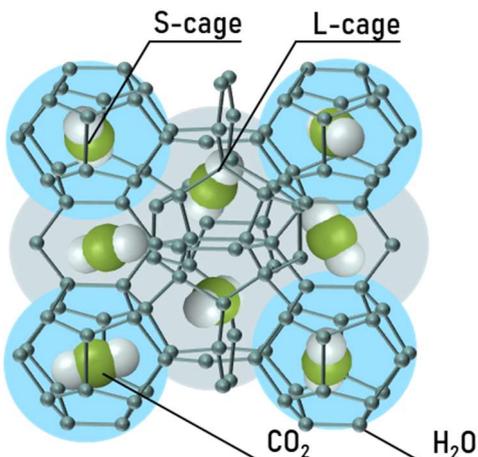


図2 CO₂ハイドレートの構造

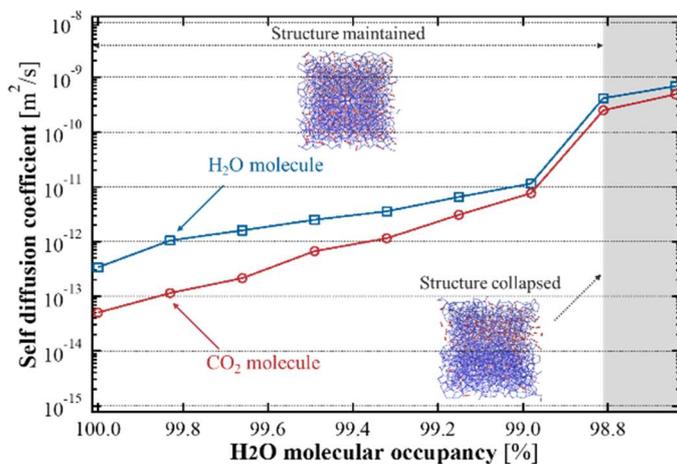


図3 H₂O分子の占有率と自己拡散係数の関係

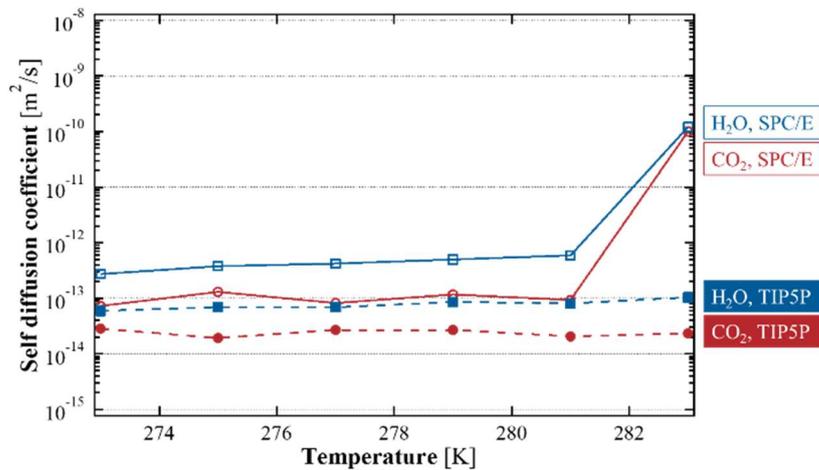


図4 使用した水分子モデルごとの温度と拡散係数の関係

3. 学際共同利用として実施した意義

本研究グループで対象としている計算体系で数値計算を実施する場合、数十ノードを伴う並列計算ではなく、多数のCPUを実装する単一のノードで計算を実行することが望ましい。これらの理由から、単一ノード当たりのコア数が最多のスーパーコンピュータであるOakforest-PACSが最適であると判断した。本制度の利用により、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。

4. 今後の展望

本研究グループではCO₂ハイドレートの成長過程を可視化する実験を平行して実施している。実験によって取得したCO₂ハイドレート膜を透過する物質質量とシミュレーションによって取得したハイドレート膜内の分子拡散係数より、CO₂ハイドレート膜の成長挙動を予測する物理モデルを構築する。

5. 成果発表

(1) 学術論文

Rintaro Fujikawa, Xiao Ma, Norifumi Yamamoto, Akiko Kaneko, Yutaka Abe, "Development of a kinetic model for clathrate hydrate film growth in combination with a multi scale mass transfer", *Int. J. Heat Mass Transf.*, 2019, Submitted.

(2) 学会発表

藤川 凜太郎; 馬 驍; 山本 典史; 金子 暁子; 阿部 豊, 「分子動力学シミュレーションを用いたCO₂ハイドレート膜を透過する分子の輸送挙動」, 第55回日本伝熱シンポジウム, 札幌, 2018年5月

Rintaro FUJIKAWA, Xiao MA, Shuhei FUJIMOTO, Akiko KANEKO, Yutaka ABE, "Dissolution and Diffusion Behavior of Liquid CO₂ into Water under High Pressure Condition using Direct Visualization Method for CCS", *GHGT-14*, Melbourne, Oct. 2018

藤川 凜太郎, 山本 典史, 金子 暁子, 阿部 豊, 「CO₂ハイドレート内の自己拡散係数推定のMDシミュレーションとCO₂ハイドレート溶解量の可視化計測」, 第32回分子シミュレーション討論会, つくば, 2018年11月

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
COMA			
Oakforest-PACS	○	35,000	
※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。			