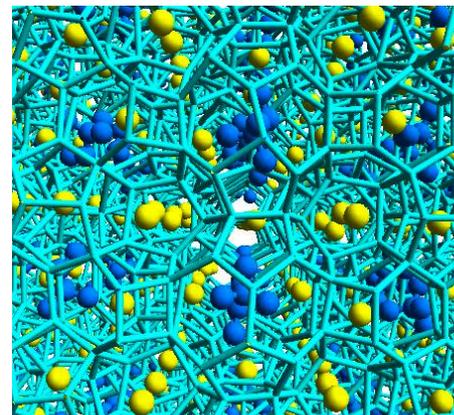


天然ガス成分や水素の新しい貯蔵・輸送方法として注目されるクラスレート水和物 その相平衡条件を分子動力学シミュレーションを用いて予測するシミュレータを開発、天然ガス等の貯蔵・輸送に係るコスト削減のための予測を可能にした

開発したプログラムは、分子動力学シミュレーションを用いて、クラスレート水和物の相平衡条件を計算するためのものであり、既に実験データがある物質の相平衡条件について分子動力学シミュレーションで計算した結果と良い精度で一致することを確認しました。また実験データがないものについて、シミュレーション計算で最適な相平衡条件を予測した上で、相平衡測定の実験を行ったところ、効率的に実験を行うことができ、本シミュレーション計算の有用性を確認しています。

● 現在、天然ガスはLNG^(注1)やCNG^(注2)の形態で貯蔵・輸送を行っています。これをLNGより高温(0℃以上)でCNGより低圧(30atm程度)で生成することができるのが、クラスレート水和物です。本クラスレート水和物により固定化し、貯蔵・輸送する手法では、試算では貯蔵・輸送コストはLNGに比べて20%程度の低コスト化が可能であり、省エネルギーな貯蔵・輸送技術となり得るものと期待されています。



▲分子動力学シミュレーションで計算したクラスレート水和物^(注3)の系(水分子は表示せず、水素結合を棒で表した)

- (注1) 液化天然ガス。-162℃以下に冷却され液化した状態で輸送される。
- (注2) 圧縮天然ガス。高い圧力で圧縮されて液化した状態で輸送される。
- (注3) あるゲスト物質が水分子の水素結合により作られる籠の中に閉じ込められた構造

競合技術への強み

	測定可能なゲスト物質	相平衡条件の測定に要する時間	正確性	コスト
実験法	△ 可燃性や反応性の強いゲスト物質には特別な装置が求められる。	× 1つのゲスト物質あたり1〜3〜6か月	○ 温度・圧力測定の不確かさは0.1 K、10 kPa以内。	△ 1つのゲスト物質あたり50万円〜200万円。
シミュレーション法(本技術)	△ 可燃性や反応性の強いゲスト物質でも計算可能であるが、あらかじめ電荷などの分子に特有の「ラマーゲ」が必要となる。	○ 1つのゲスト物質あたり1〜3か月(一般に実験法の2〜3倍早い)	△ 正確性を定量的に評価することはできない。実験的に探索する前に当たりを付け、目的に合致した物質のみ実験で検証することが本技術の強み。	○ ゲスト物質によってコストは変わらない。計算のためのコンピュータだけが必要。

▲クラスレート水和物の相平衡データの取得方法に係る従来技術との比較表

これまで炭化水素系のゲスト物質(天然ガス等、貯蔵・輸送の対象ガス)を中心に、クラスレート水和物の相平衡データの整備が進んできたが、天然ガス成分や水素を高密度貯蔵させるためにクラスレート水和物を利用する場合には、天然ガス成分や水素以外の大分子量のエネルギー物質(例:2,2-ジメチルブタン、2,2,3-トリメチルブタン)を含むクラスレート水和物を用いることが提案されています。しかしながら、天然ガス成分や水素以外のゲスト物質を含むクラスレート水和物の相平衡データはあまり整備されてなく、データがない新規ゲスト物質の相平衡条件を見出すためには、相平衡測定の実験(ベテランの研究者でも通常、3〜6か月かかる)を数多く行う以外ありませんでした。本研究では、実験による相平衡データがないゲスト物質に対して、通常、3〜6か月かかる実際の測定実験を行うことなく分子シミュレーション及び分子シミュレーションと熱統計力学モデルを組み合わせた方法の2つのシミュレーションにより、実験を行うことなく1〜3か月という短時間で相平衡データを取得し、クラスレート水和物での貯蔵・輸送に適したゲスト物質を見出すことを可能にしました。また、クラスレート水和物生成時の動的な過程の予測を可能にする計算機シミュレーションの手法を開発しました。

ここがポイント

実験値が存在しない新規ゲスト物質2,2,3,3-tetramethylbutaneについて分子シミュレーションにより予測することができ、目標のひとつを達

成しました。また、熱統計力学モデルを用いたシミュレーションでは、本研究で導出したパラメータを用いると、メタン+水素およびエタン+水素の広い温度領域(特に高温域)において良好に相平衡条件の実験値をシミュレーションで再現でき、その優位性が明白となりました。

ブレイクスルーへの道のり

2001年: クラスレート水和物を用いた天然ガスの貯蔵・輸送のため、クラスレート水和物の生成・分解過程の理解を分子レベルで行うことを目指し、平成12年度NEDO産業技術研究助成のもと、シミュレーション研究を行った。分子動力学シミュレーションを高速化するため、分子動力学専用計算機MDGRAPE-2を用いたプログラムの開発を地道に続け、メタンをゲスト物質とするクラスレート水和物の分解過程の計算をした。

2002年: 引き続き計算の高速化(専用計算機に依存しない計算手法の検討)と分解過程のシミュレーションを行い、シミュレーションにより分解の様子を分子レベルで把握。クラスレート水和物の生成には天然ガスをより分子レベルで水に溶解させることが必要であることを見出した。

2003年: より低い圧力(高い温度)条件で生成するハイドレート水和物を利用することで、貯蔵・輸送に利用する提案をJOGMECにし採択された。研究代表者泰岡氏は分担者として参加し、ハイドレート水和物の分解過程をさらに詳細に調べた。

2004年: 前年に引き続き分解過程について計算を行う。この頃から、本研究プロジェクトで開発した相平衡予測のアイデアを考案し、産業技術として活用するためには、相平衡予測を行うことが一番考えたこと、分子シミュレーションで分子レベルの知見を生かしつつ、予測できる方法を提案したいと考えたからである。

2005年: 本研究プロジェクトを平成17年度第1回NEDO産業技術研究助成に応募し採択された。自由エネルギーの計算を行う部分の開発を始める。理論的に正しく、かつ結果が妥当であるものを出すのに時間を要した。

2006年: 分子動力学シミュレーションで自由エネルギーを計算し、相平衡条件を予測することに成功する。実験でも確認し、特許を出願した。また、熱統計力学モデルを用いた計算プログラムの開発も行い、新たな結果を特許出願した。

2007年: 相平衡、連続生成のシミュレータのまとめを行った。更なる特許出願を検討している。

■サクセス・キー

計算による予測に興味を持ち、分子動力学シミュレーションを用いた研究を行っていた代表研究者の泰岡氏と、実験による研究を精力的に行っていた分担者の森康彦氏が常日頃からお互いのアイデアを相談し合い、計算と実験を組み合わせることができるが無いかと考えていた。また助成研究期間中も常にお互いに議論して研究に取り組んでいきた。専門が違う研究者が本気で連携して研究を行うことができた点が成功の鍵である。また特許出願のほか、投稿論文を複数発表し、学会での発表を行うことも重要であり、学会発表の場を通じて、研究者間のみでなく、企業の方とも話す機会が持つことができた点が、産業応用への一歩となった。

■ネクスト・ストーリー

今後、クラスレート水和物の相平衡予測や連続生成計算をさらに行い、本方法の実用化を目指していきます。また他の利用用途についても、例えばハイドレート冷凍機(クラスレート水和物を高温で生成し低温で分解させることによってヒートポンプを実現する)における新規ゲスト物質の探索にも応用する予定です。実験的に探索する前にシミュレーションにより当たりを付け、目的に合致した物質のみ実験で検証することで、実験に要するコストの大幅カットと時間の節約、研究開発スパンの短縮化が可能になります。分子レベルのシミュレーションを用いた取り組みは今後さらに拡大して行くのではないかと考えています。



プロジェクトID・研究テーマ名・年度
00B60007「クラスレートハイドレートによる高密度天然ガス貯蔵・利用技術の開発」(平成12年度第1回公募)
05A45004c「クラスレート水和物を用いた高効率エネルギー貯蔵・輸送技術のための相平衡・連続生成シミュレータの開発」(平成17年度第1回公募)
代表研究者・所属機関・所属部署名・役職名
泰岡顕治 慶應義塾大学理工学部機械工学科 准教授