

氏名	馬 驍		
学位の種類	博士（工学）		
学位記番号	博 甲 第 8 5 4 0 号		
学位授与年月日	平成 3 0 年 3 月 2 3 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当		
審査研究科	システム情報工学研究科		
学位論文題目	CO <sub>2</sub> ハイドレート膜の生成・成長挙動の研究		
主査	筑波大学 教授	博士（工学）	阿部 豊
副査	筑波大学 教授	工学博士	武若 聡
副査	筑波大学 教授	工学博士	文字 秀明
副査	筑波大学 准教授	博士（工学）	金子 暁子
副査	千葉工業大学 准教授	博士（工学）	山本 典史

## 論 文 の 要 旨

本研究は、地球温暖化緩和技術として期待されている CO<sub>2</sub> の海洋貯留を実現する上において必要不可欠となる CO<sub>2</sub> ハイドレート膜の生成および成長挙動を明らかにしたものである。第 1 章では、地球温暖化緩和技術として期待されている CO<sub>2</sub> の海洋貯留における CO<sub>2</sub> ハイドレートに関わる科学的かつ工学的な課題について指摘している。第 2 章では、高圧低温条件下において、実験的に膜状の CO<sub>2</sub> ハイドレートを生成し、その厚さを計測した。CO<sub>2</sub> ハイドレート膜厚の生成と成長に影響を及ぼすと考えられる温度ならびに界面での水流速と CO<sub>2</sub> ハイドレート膜厚との相関を明らかにしている。さらに、膜厚の時系列変化についての計測を行って、膜の成長過程についての詳細実験情報を得て、ハイドレート膜が発現する過程を「生成」と「成長」に分類している。第 3 章では、高圧での可視化観測が可能な透明テスト部を用いた実験を行って、CO<sub>2</sub> ハイドレートの生成条件下における CO<sub>2</sub> の水への拡散挙動について、世界で初の実験情報を得ている。第 4 章では、水-CO<sub>2</sub> 界面のハイドレート膜が生成する際の膜厚の時間変化について、物質輸送理論に基づき、マクロスケールの膜厚予測モデルを構築した。第 5 章では、水-CO<sub>2</sub> 界面にハイドレート膜が生成した後の成長する過程における時間変化について、やはり物質輸送理論を用いることによって、マクロスケールの膜厚予測モデルを構築している。第 6 章では、CO<sub>2</sub> ハイドレート膜内での分子拡散挙動ならびに拡散係数を評価するために、ナノスケールの分子挙動を解析できる分子動力学計算を行っている。得られた拡散係数の評価結果を、第 5 章で構築したマクロスケールでの予測モデルに導入することによって、CO<sub>2</sub> ハイドレート膜の成長挙動が予測可能となることを明らかにした。第 7 章においては、本研究において構築した分子スケールの解析とマクロスケールの解析組み合わせることで、十万年オーダーにおける CO<sub>2</sub> ハイドレート膜厚の時間変化を評価している。第 8 章では、本研究において得られた成果を総括している。

## 審査の要旨

### 【批評】

気候変動に関する政府間パネル（IPCC）の第5次報告書によれば、現在地球温暖化が進行しており、その主たる要因は人為起因の二酸化炭素（CO<sub>2</sub>）の大気中への大量排出であるとされている。この問題を解決するための手段の一つとして、CO<sub>2</sub>が大気中に拡散する前に分離・回収し大気から隔離する技術「Carbon dioxide Capture and Storage（CCS）」が提案されており、IPCCの第5次報告書においても、このCCSの実現が喫緊の課題であるとされている。CCSには、CO<sub>2</sub>を地下帯水層中に貯留する方法や海洋中や海洋底窪地に貯留する方法など、様々な手法が提案されている。しかしながら、海洋底窪地や地下帯水層内にCO<sub>2</sub>を貯留する場合、高压低温条件となることから、CO<sub>2</sub>ハイドレートと呼ばれる包接水和物が生成する。このCO<sub>2</sub>ハイドレートは貯留したCO<sub>2</sub>の海水中への漏洩抑制効果がある一方、CO<sub>2</sub>圧入時における流路閉塞を引き起こす可能性が懸念されており、CO<sub>2</sub>ハイドレートの生成成長挙動の解明と定量評価が強く求められているものの、未だ未解明な状況にあった。

本研究は、地球温暖化対策のためのCCSを実現する上で必要不可欠となるCO<sub>2</sub>ハイドレートの生成・成長挙動の解明と定量評価を目指したものである。そのため、CO<sub>2</sub>ハイドレートの生成・成長過程の直接可視化観測実験を行っている。CO<sub>2</sub>ハイドレートは45気圧以上の高压かつ10℃以下の低温条件下で生成することから、これまで詳細可視化観測は行われていなかった。本研究では、高压低温条件下でも可視化観測が可能な透明テスト部を作成し、世界で初めてCO<sub>2</sub>ハイドレート膜の生成・成長過程ならびにCO<sub>2</sub>ハイドレート膜を通過する分子輸送挙動の計測に成功している。このような過酷条件下における実験とともに、CO<sub>2</sub>ハイドレート膜の成長予測を行うため、輸送理論に基づくマクロモデルの構築を行っている。さらにマクロモデル計算に必要となるCO<sub>2</sub>ハイドレート膜内を通過する分子拡散係数を、最新の分子動力学計算を導入することによって評価している。本研究により、これまで確立していなかったCO<sub>2</sub>ハイドレート膜内を通過する分子拡散挙動に対する定量評価が、分子動力学計算によって可能であることが示されるとともに、得られた分子拡散係数をマクロモデルに導入することによって、CO<sub>2</sub>ハイドレート膜の成長予測が可能となることが、世界で初めて示された。さらに構築したミクロスケールからマクロスケールのモデルを組み合わせることによって、十万年オーダーのCO<sub>2</sub>ハイドレート膜の成長予測が可能となることが示されている。これらの成果は、地球温暖化対策のためのCCSを実現する上で極めて重要な成果であり、世界的に高く評価されるものである。

### 【最終試験の結果】

平成30年2月7日、システム情報工学研究科において、学位論文審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、学位論文審査委員全員によって、合格と判定された。

### 【結論】

上記の学位論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。