

Title	クラスレート水和物の相平衡条件の分子論的予測手法の開発
Sub Title	Development of prediction method of equilibrium conditions for clathrate hydrate
Author	泰岡, 顕治(Yasuoka, Kenji)
Publisher	
Publication year	2020
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2019.)
JaLC DOI	
Abstract	分子シミュレーションを用いて, メタンをはじめとした様々なゲスト分子に対応した相平衡条件の予測が可能となる計算方法を確立した. クラスレート水和物 / 水 / ゲストの系において, 温度・体積一定の分子動力学シミュレーションを用いて相平衡条件を求める直接的な方法を提案し, 実験結果および先行研究と比較し, 本研究の妥当性を示した. また, クラスレート水和物・ゲストの系から充填率を自動的に再現するギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションの計算方法を提案した. これらの計算とメタンや水素等の実験の相平衡データと比較し, 本方法の検証を行い妥当な結果を得た. To develop prediction methods of three-phase equilibrium conditions of methane hydrate by molecular simulations, we examined the use of NVT (isometric-isothermal) molecular dynamics (MD) simulations. NVT MD simulations of coexisting solid hydrate, liquid water, and vapor methane phases were performed at four different temperatures. We found that the calculated equilibrium pressures tended to be higher than those reported by previous simulation studies using the same water model. The deviations of equilibrium conditions from previous simulation studies are mainly attributable to the employed calculation methods of pressure and Lennard-Jones interactions. Isobaric-isothermal Gibbs ensemble Monte Carlo simulations of methane hydrates in equilibrium with bulk methane are performed to calculate large and small cage occupancies. The simulations provide comprehensive predictions of large and small cage occupancies for temperatures and pressures. We also performed hydrogen hydrate system.
Notes	研究種目 : 基盤研究 (A) (一般) 研究期間 : 2015 ~ 2019 課題番号 : 15H02222 研究分野 : 熱工学
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_15H02222seika

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the Keio Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2019

課題番号：15H02222

研究課題名 (和文) クラスレート水和物の相平衡条件の分子論的予測手法の開発

研究課題名 (英文) Development of prediction method of equilibrium conditions for clathrate hydrate

研究代表者

泰岡 顕治 (Kenji, Yasuoka)

慶應義塾大学・理工学部 (矢上) ・教授

研究者番号：40306874

交付決定額 (研究期間全体) : (直接経費) 34,100,000 円

研究成果の概要 (和文) : 分子シミュレーションを用いて、メタンをはじめとした様々なゲスト分子に対応した相平衡条件の予測が可能となる計算方法を確立した。クラスレート水和物/水/ゲストの系において、温度・体積一定の分子動力学シミュレーションを用いて相平衡条件を求める直接的な方法を提案し、実験結果および先行研究と比較し、本研究の妥当性を示した。また、クラスレート水和物・ゲストの系から充填率を自動的に再現するギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションの計算方法を提案した。これらの計算とメタンや水素等の実験の相平衡データと比較し、本方法の検証を行い妥当な結果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

分子動力学シミュレーションによってクラスレート水和物の相平衡状態を求める方法が提案された。この方法を用いることにより様々なクラスレート水和物の相平衡状態を求めることができる。また、本方法を発展させることにより固体・液体・気体の3相平衡状態を求めることができるようになる。また、ギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションにより充填率を求めることができるようになり、様々なクラスレート水和物の充填率を計算できるようになった。

研究成果の概要 (英文) : To develop prediction methods of three-phase equilibrium conditions of methane hydrate by molecular simulations, we examined the use of NVT (isometric-isothermal) molecular dynamics (MD) simulations. NVT MD simulations of coexisting solid hydrate, liquid water, and vapor methane phases were performed at four different temperatures. We found that the calculated equilibrium pressures tended to be higher than those reported by previous simulation studies using the same water model. The deviations of equilibrium conditions from previous simulation studies are mainly attributable to the employed calculation methods of pressure and Lennard-Jones interactions. Isobaric-isothermal Gibbs ensemble Monte Carlo simulations of methane hydrates in equilibrium with bulk methane are performed to calculate large and small cage occupancies. The simulations provide comprehensive predictions of large and small cage occupancies for temperatures and pressures. We also performed hydrogen hydrate system.

研究分野：熱工学

キーワード：クラスレート水和物 分子動力学シミュレーション モンテカルロシミュレーション 充填率 平衡条件

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

1. 研究開始当初の背景

クラスレート水和物を利用した工学的な応用は幅広く、日本国内では 2000 年前半から LNG に代わる天然ガスの輸送手段として検討されてきた。また、最近では氷を利用した冷熱の蓄熱にかかわるクラスレート水和物を利用した冷熱の蓄熱が実用化されている。さらに、クラスレート水和物を用いて高い温度でクラスレート水和物を生成し、低い温度で分解することにより冷凍サイクルへ利用することが検討されている。この他にも二酸化炭素の分離回収など熱工学の様々な分野での応用が期待されている。これらの応用には、クラスレート水和物/ゲスト/水の熱力学的な相平衡条件を知ることが重要である。これまでに、数多くの相平衡条件を得るための実験的研究が行われており、基本的なゲスト分子の系においてはその相図が発表されている[1]。しかしながら、実験的に相図を調べることは多くの時間と金銭なコストを要するため、必要とするゲスト分子に対応する相図を直ぐに調べることは難しい。

そこで、いくつかの理論的な予測方法が開発されてきている。これまでに最も多く行われている方法は、ファンデルワールス・プラトーの理論に基づく統計熱力学的手法を用いたものである[1]。この方法では、実験のデータを元にしてゲスト分子と水分子が作るかごの間の相互作用パラメータをフィッティングにより求め、相図を予想することができる[2]。しかし、実験データを用いたフィッティングであることから、多くの実験データが必要となる。また、ゲスト分子の種類が 2 種類以上になった場合には、広範囲な温度・圧力条件へのフィッティングが困難であることが知られている。この問題を解消するために、水とゲストの間のポテンシャルを分子シミュレーションにより求める方法も提案されているが、相図を予測する方法には至っていない[3,4]

これに対して、分子レベルのシミュレーションのみで予測する方法が 2 つ提案されている。1 つは、熱力学的積分法を用いた方法でクラスレート水和物、水のそれぞれの系の化学ポテンシャルを計算することにより、相図を計算する方法である ([5, 6])。現在発表されている結果は、実験結果に近い結果と実験結果からかなり離れている結果があり、方法の信頼性が確保できているとはいえない。また計算のコストが非常に大きくなることが知られていることから、工学的に利用できるようにするには、方法の習得とともに計算時間の確保が重要となる。

もう 1 つの方法は、クラスレート水和物/水/ゲスト物質の 3 相平衡状態を一つの系の中で実現して、相平衡条件を求める直接的な方法である。この方法もいくつかの研究が発表されているが[7-9]、それぞれの結果は大きく異なっており、方法の確立が求められている。

2. 研究の目的

分子シミュレーションを用いて、メタンをはじめとした様々なゲスト分子に対応した相平衡条件の予測が可能となる計算方法の確立を行う。クラスレート水和物/水/ゲストの系において、温度・体積一定の分子動力学シミュレーションを用いて相平衡条件を求める直接的な方法を確立する。また、クラスレート水和物・ゲストの系から充填率を自動的に再現するギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションの計算方法を確立する。これらの計算とメタンや水素等の実験の相平衡データと比較し、本方法の検証を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 直接計算によるメタンハイドレート相図取得[10]

メタンハイドレート/水/メタン系の 3 相平衡条件を求めるため、分子動力学シミュレーションを行った。上記のように、温度あるいは圧力を一定にしたシミュレーションを行い、相図の作成を目指した。このような複数の相が共存する系では、各相の圧縮率の違い、界面張力の影響が大きいため圧力を制御することは難しい。そこで、粒子数・体積・温度一定 (NVT 一定) のシミュレーションを実施することにした。温度は、285, 290, 295, 300 K とし、各温度で初期圧力の異なるシミュレーションをいくつか実施し、相平衡圧力を求めた。初期圧力によってハイドレート相の成長あるいは分解が起き、それに伴い系内の圧力が変化する。成長、分解のどちらも起きない状態が得られた場合、それは三相平衡状態となり、その時の圧力が平衡圧力となる。本研究では、成長/分解シミュレーションの最後の 100 ns で得られた圧力の間に平衡圧力が存在すると考え、それらの中央値を平衡圧力とみなした。ここで、圧力の計算ではメタン相の圧力を計算することとした。界面が圧力計算に影響を及ぼすのを避けるため、界面から離れた場所の数密度を求め、その数密度における圧力を算出した。数密度と圧力の関係は、別途メタン相のシミュレーションを行って求めた。圧力計算は他の相に適用しても問題ないが、ハイドレート相は固相であるために圧力計算が難しく、水相にはメタン分子が溶解しているため、溶解度も考慮して圧力を計算しなければならないことに注意が必要である。計算には汎用分子動力学計算用パッケージの GROMACS を利用した。水分子モデルには TIP4P/Ice, メタン分子モデルには OPLS-UA を用いた。

(2) ギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションによる充填率取得

メタンハイドレート[11]、水素ハイドレートについて[12]、様々な温度・圧力条件下での充填率をギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションで計算した。ギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションでは、ハイドレートとゲスト分子のバルク相を用意し、両者間でゲスト分子の化学ポテンシャルが一定になるようにゲスト分子の移動を行う。その結果、平衡状態でのハイドレート相の充填率が取得できる。メタンハイドレート系の温度・圧力条件は、それぞ

れ 270～290 K, 2～40 MPa とし, 水素ハイドレート系の温度・圧力条件は, それぞれ 150～300 K, 30～1000 MPa とした. 計算には汎用モンテカルロシミュレーションパッケージの MCCCSTowhee を用いた. 水分子モデルには TIP4P/Ice を, メタン分子モデルには OPLS-UA を, 水素分子モデルには Silvera-Goldman モデルを用いた.

4. 研究成果

(1) 直接計算によるメタンハイドレートの相図取得

メタンハイドレート/水/メタン系で求めた相図を図 1 に示す. 実験や他のシミュレーション手法から求められた相平衡条件も同図内に示した. まず, 各温度で得られた平衡点が妥当なものであったかどうかを確かめるために, 各点における相平衡線の傾きを Clapeyron の式を用いて求めた. ハイドレート相の相変化に伴うエンタルピー変化と体積変化は, 平衡温度・圧力下で水相, メタン相, メタンハイドレート相の温度・圧力一定シミュレーションをそれぞれ行って求めた. これより得られた相平衡線は図 1 中の実線のようになり, それぞれが滑らかに繋がっているのが予測できる. よって, 温度一定シミュレーションから本分子モデルの相平衡条件が求まったと考えられる.

本研究で得られた平衡圧力は, どの先行研究よりも高い値を示した. 図 1 中の Conde and Vega[8]と Michalis ら[13]の結果は, 温度・圧力一定シミュレーションによって得られた結果である. Conde and Vega の結果は実験値に近い値を示しているが, Michalis らがより長時間 (マイクロ秒オーダー) のシミュレーションで同様の解析を行ったところ, 実験よりも高い平衡圧力が得られることがわかった. 本研究でも同様の長時間シミュレーションを適用しているが, Michalis らの結果との違いは, 主に圧力の取扱方法の違いに起因すると考えられる. 温度・圧力一定シミュレーションでは, 三相共存系の圧力成分 (P_{xx} , P_{yy} , P_{zz}) を同じ値で制御していると思われるが, これは界面張力の効果を無視していることになる. 界面張力の影響により, 圧力の各界面に平行な成分は垂直な成分よりも低くなるはずである. 300 K での温度一定シミュレーションから求めたメタン相の圧力と系全体の圧力 ($(P_{xx} + P_{yy} + P_{zz})/3$) を比較したところ, メタン相の圧力の方が約 100 bar 高い値を示していた. 一方で, メタン相の圧力は界面に垂直な圧力成分 (P_{zz}) と概ね一致したため, 圧力を制御する場合はこの成分のみを制御するのが適切であろう.

図 1 中の Jensen ら[6]と Waage ら[14]の結果は, モンテカルロシミュレーションによる熱力学積分法を用いて得られたものである. Jensen らが求めた平衡圧力は, 他と比べて非常に低い値を示した. Waage らは, Jensen らの手法におけるメタン相のフガシティー計算に重大な問題があることを指摘し, それらを改善した同手法で実験値と近い値を得ることに成功した. 本研究の結果が, Waage らの結果よりも高い平衡圧力を示したのは, 主に Lennard-Jones (LJ) 相互作用の取扱方法の違いに起因すると考えられる. Waage らの手法では, 各相を切り離して独立なシミュレーションを行うため, カットオフ距離 (1.0 nm) よりも遠くの LJ 相互作用も tail corrections によって計算できる. 一方, 本研究では 3 相共存系におけるシミュレーションを行っているため, tail corrections を適用できない. 一般的に, tail corrections を適用すると, 適用しない場合に比べて低い圧力が得られることがわかっている. 本研究ではメタン相の数密度から圧力を算出しているため, 300 K のメタン相の数密度から tail corrections を用いて圧力を再計算したところ, 138 bar ほど圧力が低くなることがわかった (本研究のメタン相の数密度は共存系のシミュレーションから求められているため, 厳密には tail corrections は適用できないことを注記しておく). よって, 共存系のシミュレーションから平衡圧力を求めたい場合は, より大きなカットオフ距離を適用する必要があるだろう.

以上より, 分子動力学シミュレーションから 3 相共存系の相平衡条件を直接求める際は, 特に圧力の取扱, LJ 相互作用の取扱に注意が必要であることがわかった. 温度一定シミュレーションを用いた手法は, 圧力に自由度を持たせているため, 温度・圧力一定シミュレーションよりも少ないシミュレーション数で平衡条件を求めることが可能である. ハイドレート系のシミュレーションは計算コストが大きいので, これは重要な利点といえるだろう.

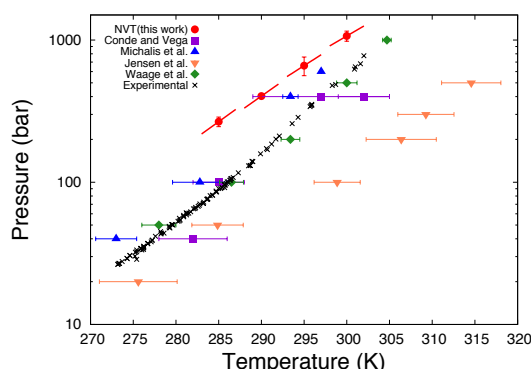


図 1. メタンハイドレートの 3 相平衡条件. ●が本研究によって得られた結果. ×は実験[1]から, その他の点は分子シミュレーション[6, 8, 13, 14]から得られた結果を表す.

(Reprinted from [10], with the permission of AIP Publishing.)

(2) ギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションによる充填率取得

メタンハイドレート相とメタン相を用意し、ギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションを用いて充填率を求めた。メタンハイドレートは構造 I をとるため、ハイドレート相内には大ケージ (5¹²6²) と小ケージ (5¹²) の 2 種類のケージが存在する。よって、充填率はケージ毎に求めた。本研究と先行研究によって得られた充填率を表 1 に示す。異なる分子モデル (水: TIP4P/Ew, メタン: TraPPE-UA) を用いたギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションの結果[15]と比較すると、低圧域において本研究の方が高い充填率を示した。これは用いた分子モデルの違いに起因するが、ラマン分光法の結果[16]と比較した場合、本研究で用いた分子モデルの方が大ケージの充填率においてよい一致を示すことがわかった。最後に、充填率計算で一般的に用いられている理論モデル、van der Waals and Platteeuw モデルとの比較を行うため、10 MPa において CSMGem[17]で充填率を計算したところ、本研究の充填率は全体的に高い値となったが、定性的により一致を示した。

水素ハイドレート相と水素相についても同様の計算を行った。水素ハイドレートは構造 II をとるため、大ケージ (5¹²6⁴) と小ケージ (5¹²) の 2 種類のケージが存在する。よって、充填率はケージ毎に求めた。本計算の結果は、グランドカノニカル・モンテカルロシミュレーション[18]や理論モデル[19]による予測結果とも良い一致を示した。また、これまで実験や理論モデルによる様々な研究で、1 つのケージに複数の水素が入ることができるかについて議論が行われてきたが、本計算では 225, 250 K, 300 MPa という条件下で 0.1 %の小ケージに 2 個の水素分子が存在しているのを確認した。この結果は、今後の水素ハイドレートの充填率や安定性の研究において有用な知見となる。

本研究により、ギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーションによって、幅広い温度・圧力領域の充填率が求められることが示された。実験が難しい高圧領域でも計算可能である点はとても有用である。今後も手法の改善は必要であるが、様々なハイドレートの充填率計算への応用が期待される。

表 1. メタンハイドレートの充填率。左から実験 (ラマン分光法) [17], 別の分子モデルによるギブスアンサンブル・モンテカルロシミュレーション[16], 本研究の結果[11]を表す。

T [K]	p [MPa]	Uchida et al. [17]			Henley et al. [16]			This work [11]		
		Total	Large	Small	Total	Large	Small	Total	Large	Small
273.6	2.99	0.925	0.980	0.760	0.827	0.902	0.600	0.938	0.967	0.852
273.8	5.00	0.946	0.976	0.857	0.884	0.940	0.715	0.960	0.979	0.902
274.2	5.92	0.935	0.978	0.804	0.897	0.948	0.743	0.965	0.982	0.914
278.1	7.81	0.930	0.978	0.787	0.904	0.953	0.758	0.967	0.983	0.920

参考文献

- [1] E. D. Sloan and C. A. Koh, *Clathrate Hydrates of Natural Gases*, Third Ed., CRC Press (2007)
- [2] E. Sato, T. Miyoshi, R. Ohmura, and K. Yasuoka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**, 5944-5950(2007).
- [3] B. J. Anderson, J. W. Tester, and B. L. Trout, *J. Phys. Chem. B*, **108**, 18705 (2004).
- [4] H. Tanaka and M. Matsumoto, *J. Phys. Chem. B*, **115**, 14256 (2011).
- [5] S. J. Wierzbowski and P. A. Monson, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **45**, 424 (2006). *J. Phys. Chem. B*, **111**, 7274 (2007).
- [6] L. Jensen, K. Thomsen, N. von Solms, S. Wierzbowski, M. R. Walsh, C. A. Koh, E. D. Sloan, D. T. Wu, and A. K. Sum, *J. Phys. Chem. B*, **114**, 5775 (2010).
- [7] Y.-T. Tung, L.-J. Chen, Y.-P. Chen, and S.-T. Lin, *J. Phys. Chem. B*, **114**, 10804 (2010).
- [8] M. M. Conde and C. Vega, *J. Chem. Phys.*, **133**, 064507 (2010); *J. Chem. Phys.*, **138**, 056101 (2013).
- [9] G. S. Smirnov and V. V. Stegailov, *J. Chem. Phys.*, **136**, 044523 (2012).
- [10] D. Yuhara, P. E. Brumby, D. T. Wu, A. K. Sum and K. Yasuoka, *J. Chem. Phys.*, **148**, 184501 (2018).
- [11] P. E. Brumby, D. Yuhara, D. T. Wu, A. K. Sum, and K. Yasuoka, *Fluid Phase Equilibria*, **413**, 242-248(2016).
- [12] P. E. Brumby, D. Yuhara, T. Hasegawa, D. T. Wu, A. K. Sum, and K. Yasuoka, *J. Chem. Phys.*, **150**, 134503 (2019).
- [13] V. K. Michalis, J. Costandy, I. N. Tsimpanogiannis, A. K. Stubos and I. G. Economou, *J. Chem. Phys.*, **142**, 044501 (2015).
- [14] M. H. Waage, T. J. Vlugt and S. Kjelstrup, *J. Phys. Chem. B*, **121**, 7336 (2017).
- [15] H. Henley, A. Lucia, *J. Nat. Gas Sci. Eng.*, **26**, 446-452 (2015).
- [16] T. Uchida, T. Hirano, T. Ebinuma, H. Narita, K. Gohara, S. Mae, R. Matsumoto, *AIChE J.*, **45**, 2641-2645 (1999).
- [17] A.L. Ballard, E.D. Sloan Jr., *Fluid Phase Equilib.*, **194-197**, 371-383 (2002).
- [18] K. Katsumasa, K. Koga, and H. Tanaka, *J. Chem. Phys.*, **127**, 044509 (2007).
- [19] R. V. Belosludov, O. S. Subbotin, H. Mizuseki, Y. Kawazoe, and V. R. Belosludov, *J. Chem. Phys.*, **131**, 244510 (2009).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 3件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 P. E. Brumby, D. Yuhara, T. Hasegawa, D. T. Wu, A. Sum and K. Yasuoka	4. 巻 150
2. 論文標題 Cage Occupancies, Lattice Constants and Guest Chemical Potentials for Structure II Hydrogen Clathrate Hydrate from Gibbs Ensemble Monte Carlo Simulations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 134503
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5084785	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yuhara Daisuke, Brumby Paul E., Wu David T., Sum Amadeu K., Yasuoka Kenji	4. 巻 148
2. 論文標題 Analysis of three-phase equilibrium conditions for methane hydrate by isometric-isothermal molecular dynamics simulations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 184501～184501
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5016609	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Brumby Paul E., Yuhara Daisuke, Wu David T., Sum Amadeu K., Yasuoka Kenji	4. 巻 413
2. 論文標題 Cage occupancy of methane hydrates from Gibbs ensemble Monte Carlo simulations	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Fluid Phase Equilibria	6. 最初と最後の頁 242～248
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.fluid.2015.10.005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計22件（うち招待講演 0件／うち国際学会 17件）

1. 発表者名 D. Yuhara, P.E. Brumby, D.T. Wu, A.K. Sum, K. Yasuoka
2. 発表標題 Isothermal-isometric molecular dynamics approach for prediction of three-phase equilibrium conditions of methane hydrate system
3. 学会等名 17th International Conference on the Properties of Water and Steam（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Daisuke Yuhara, Paul E. Brumby, David T. Wu, Amadeu K. Sum, Kenji Yasuoka
2. 発表標題 Analysis of Three Phase Co-existence Conditions for Methane Hydrate, Methane Vapor, and Liquid Water System using Isothermal-Isometric Molecular Dynamics Simulation
3. 学会等名 The 9th International Conference on Gas Hydrate (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Daisuke Yuhara, Paul E. Brumby, David T. Wu, Amadeu K. Sum, Kenji Yasuoka
2. 発表標題 Isometric-Isothermal Molecular Dynamics Simulation of Methane Hydrate/Water/Methane Coexistence System
3. 学会等名 Clathrate Hydrate Fundamentals Workshop (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Paul E. Brumby, Daisuke Yuhara, David T. Wu, Amadeu K. Sum, Kenji Yasuoka
2. 発表標題 Simulations of Gas Hydrates by the Gibbs Ensemble Monte Carlo Method with Partial Phase Separation
3. 学会等名 The 9th International Conference on Gas Hydrate (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Paul E. Brumby, Daisuke Yuhara, David T. Wu, Amadeu K. Sum, Kenji Yasuoka
2. 発表標題 Isothermal-isobaric Gibbs ensemble Monte Carlo simulations of various clathrate hydrates
3. 学会等名 Clathrate Hydrates Fundamentals Workshop (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Tomohiro Hasegawa, Daisuke Yuhara, Paul E. Brumby, Ryo Ohmura, Kenji Yasuoka
2. 発表標題 Molecular dynamics simulations for the dissociation process of carbon dioxide hydrate
3. 学会等名 Clathrate Hydrates Fundamentals Workshop (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 湯原大輔, Paul E. Brumby, David T. Wu, Amadeu K. Sum, 泰岡顕治
2. 発表標題 分子シミュレーションを用いたメタンハイドレートの相平衡条件及びケージ占有率の解析
3. 学会等名 日本エネルギー学会第26回大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 長谷川智大, 湯原大輔, Paul E. Brumby, 泰岡顕治
2. 発表標題 二酸化炭素ハイドレートの分解過程における分子動力学シミュレーション
3. 学会等名 第31回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Brumby, P., Yuhara, D. Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Gibbs Ensemble Monte Carlo simulations of ethane-methane hydrate
3. 学会等名 The 11th Asian Thermophysical Properties Conference(ATPC 2016) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 湯原大輔, Brumby, P. E., Wu, D. T., Sum A. K., 泰岡顕治
2. 発表標題 NVT分子動力学シミュレーションを用いたメタンハイドレート/水/メタン系における三相平衡点の解析
3. 学会等名 日本機械学会熱工学コンファレンス2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuhara, D., Brumby, P. E., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Equilibrium Molecular Dynamics Simulation of Three-Phase Coexistence System for Methane Hydrate
3. 学会等名 The 4th International Conference on Molecular Simulation(ICMS 2016) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Brumby, P., Yuhara, D., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.,
2. 発表標題 The stability of binary ethane-methane clathrate hydrate for various gas phase compositions by isobaric-isothermal Gibbs Ensemble Monte Carlo
3. 学会等名 The 4th International Conference on Molecular Simulation(ICMS 2016) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 湯原大輔, Brumby P. E., Wu D. T., Sum, A. K., 泰岡顕治,
2. 発表標題 分子シミュレーションを用いたメタンハイドレートの相平衡条件予測方法
3. 学会等名 第30回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 湯原大輔, Paul Brumby, David T. Wu, Amadeu K. Sum, 泰岡顕治
2. 発表標題 分子動力学シミュレーションを用いたメタンハイドレートの相平衡状態の予測
3. 学会等名 第29回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Yuhara, D., Brumby, P. E., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.,
2. 発表標題 Prediction of Three Phase Equilibrium Points of Methane Hydrate by NVT Molecular Dynamics Simulation
3. 学会等名 First Pacific Rim Thermal Engineering Conference(PRTEC) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Brumby, P. E., Yuhara, D., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Equilibrium Properties of Methane Hydrate by Gibbs Ensemble Monte Carlo Simulations
3. 学会等名 First Pacific Rim Thermal Engineering Conference(PRTEC) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Brumby, P. E., Yuhara, D., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Advantages of the Gibbs ensemble Monte Carlo method for the simulation of clathrate hydrates at equilibrium
3. 学会等名 Global Environmental System Leaders (GESL) Workshop 2016 on Molecular Simulation (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuhara, D., Brumby, P. E., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Prediction of the three-phase coexistence points for methane hydrate by NVT molecular dynamics simulation
3. 学会等名 Global Environmental System Leaders (GESL) Workshop 2016 on Molecular Simulation (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yuhara, D., Brumby, P. E., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Phase equilibrium study of methane hydrate by NVT molecular dynamics simulation
3. 学会等名 Coarse graining:force fields and simulation (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Brumby, P. E., Yuhara, D., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Cage occupancies in sI methane hydrates by Gibbs ensemble Monte Carlo simulation
3. 学会等名 Coarse graining:force fields and simulation (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Brumby, P. E., Yuhara, D., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Gibbs ensemble Monte Carlo simulations of cage occupancies in strcutre I methane hydrate
3. 学会等名 4th IGER International Symposium on Science of Molecular Assembly and Biomolecular Systems (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Brumby, P. E., Yuhara, D., Wu, D. T., Sum, A. K. and Yasuoka, K.
2. 発表標題 Gibbs ensemble Monte Carlo simulations of sI methane hydrate
3. 学会等名 Telluride Workshop "Clathrate Hydrates Fundamentals: Bridging Molecular Structures to Microscopic Properties and Behavior" (国際学会)
4. 発表年 2015年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

—

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----