

氏名(本籍)	やまねけんじ 山根健次(和歌山県)		
学位の種類	博士(工学)		
学位記番号	博乙第1546号		
学位授与年月日	平成11年7月23日		
学位授与の要件	学位規則第4条第2項該当		
審査研究科	工学研究科		
学位論文題目	深海条件下におけるCO ₂ とCO ₂ ハイドレートの溶解特性に関する実験的研究		
主査	筑波大学教授	工学博士	成合英樹
副査	筑波大学教授	工学博士	村上正秀
副査	筑波大学併任教授 (機械技術研究所)	工学博士	矢部彰
副査	筑波大学助教授	工学博士	石黒博
副査	船舶技術研究所支所長	工学博士	綾威雄

論文の内容の要旨

地球温暖化対策の観点から、CO₂の排出削減あるいは回収したCO₂を処理する事により、大気中CO₂濃度の上昇を抑制することが現在緊急の課題となっている。しかし、省エネルギーなど従来の方法のみによる排出量削減は極めて困難であるため、回収されたCO₂を処理する方法の開発が求められている。その一つに海洋におけるCO₂の処理があり、溶解法や貯留法等の提案がなされている。水中では約5MPa以上の高圧力、約10℃以下の低温度条件下でCO₂がハイドレートを形成するが、この形成に関わる詳細なメカニズムは明らかでない。本研究は、CO₂とCO₂ハイドレートの溶解特性につき実験的に研究を進め、溶解度と溶解速度に関する新しいデータを得て、溶解の物理モデルを示したものである。

深海条件下のCO₂溶解実験として、圧力5MPaと圧力30MPaの深海模擬実験装置を製作した。まず、CO₂ハイドレートの生成様態を観察し、それに対する注入法や注入速度、水の履歴、不純物等の条件の影響を明らかにした。次いでCO₂の溶解速度を、静止水中と流水中につきCO₂がハイドレート膜で覆われている場合と覆われていない場合につき調べた。そして、温度約10℃以下のハイドレート生成域で、ハイドレートで覆われている場合には覆われない場合に比べ溶解速度が数分の一に減少し、温度の上昇と共にその差が小さくなることを示した。これは圧力と水温が同じ条件でCO₂の溶解速度にハイドレートを生成せず溶解速度が大きいものとハイドレートを生成し溶解速度が小さいものの二元性があることを示している。

次に、水中におけるCO₂の溶解度を測定した。すなわち、ハイドレート共存溶解度(飽和CO₂濃度)を、ハイドレート生成域の温度10℃以下で調べ、温度の低下と共に飽和CO₂濃度が減少するという新しい結果を得た。これは、非ハイドレート領域での温度依存性と逆の特性である。この結果を、ハイドレート析出を伴う相図より説明した。また、この飽和溶解度を使うことにより、ハイドレート域での溶解速度の温度の低下に伴う減少効果を説明した。

そのほか幾つかの観察実験の結果を加え、ハイドレート生成域のCO₂の溶解としてハイドレート膜に欠陥を相定するモデルでは説明がつかないことを示した。そして新たに、ハイドレート膜の溶解はハイドレートの単体分子(クラスター)が膜表面から分離することのより生じ、一方膜の内側でハイドレートが順次生成するという物理モデルを提案した。そしてこれによりCO₂溶解度の二元性などの実験データを矛盾なく説明できることを示し

た。

最後に、このような溶解特性から見た深海貯留法につき考察を加えた。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究は、深海中でのCO₂のクラスレート生成という新しい問題に対し、独創的な実験により、世界で初めてという多くの実験結果を得た。特に、ハイドレート生成領域で、CO₂の溶解度が温度の上昇と共に上昇するという結果は極めて重要であり、ハイドレート生成の物理モデルに貴重なデータである。これを、実験的に示すばかりでなく、この現象が固体の溶解度特性と類似であることから、従来のモデルの欠陥を指摘し新しい物理モデルを提案しており、高く評価できる。

よって、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。