

論文審査の結果の要旨

氏名 坂東 茂

本論文は、5章からなり、第1章では序論、第2章では水や塩化ナトリウム水溶液に対する二酸化炭素の溶解度の測定、第3章では二酸化炭素の溶解した水溶液の粘性係数の測定、第4章では高圧環境下で水中を上昇する二酸化炭素液泡の溶解プロセスの実験と解析、第5章では結論が述べられている。

第2章では、水や塩化ナトリウム水溶液に対する二酸化炭素の溶解度を圧力 10~20MPa、温度 30~60°C、塩化ナトリウム重量分率 0~0.03 の範囲で測定している。高圧容器内で作成した飽和溶液から、氷水に浸けた体積既知の小さなシリンダーに 1 気圧程度のサンプルを採取し、その重さ、圧力、温度から、低圧で用いられるヘンリー則と塩析の影響を用いて成分を分析し、溶解度を計算している。溶解度は温度が上がるにつれて下がり、圧力が上がるにつれて上がるという結果を得ている。また、塩化ナトリウム重量分率が上がるほど溶解度は下がり、塩析を裏付けた結果となった。その結果をヘンリー数でまとめ、温度、圧力、塩化ナトリウム重量分率をパラメータとした相関式を作成している。

第3章では、二酸化炭素の溶解した水溶液の粘性係数を測定している。粘性係数の測定方法として落球法を用いている。これは、直径 0.5mm の球が落下する速度を測定し、抵抗係数と Re 数との相関式と、球に働く力のバランス

を示した式の 2 式を計算することで抵抗係数と粘性係数を算出する方法である。本実験においては Re 数が 100 程度であり、球に働く力としては重力、浮力、抵抗力を考えれば良い。また、抵抗係数と Re 数との相関式は多数存在するが、あらかじめ純水、塩化ナトリウム水溶液に対して実験を行ない、最も精度良く表す相関式を選び出している。高圧下において二酸化炭素の溶解した溶液の粘性を計測した結果、粘性係数は温度が上がるにつれて下がり、圧力にはあまり影響せず、塩化ナトリウム重量分率が上がると粘性係数も上昇するという傾向を示している。二酸化炭素が飽和している溶液の粘性係数は、同圧力・同温度条件で二酸化炭素が溶解していない溶液の粘性係数と比較すると、温度が上がるにつれて粘性係数に差が出なくなり、その粘性係数の相対比は温度の一次式で表されることを示した。さらに、同じ温度の条件下には粘性係数は二酸化炭素濃度に比例することも明らかにし、これら 2 つの性質を考慮して、粘性係数の相関式を求めている。

第 4 章では、上昇する二酸化炭素液滴の溶解過程を明らかにするために、高圧環境において二酸化炭素液滴を放して CCD カメラを用いてその動きを解析する実験を行なっている。一般に水中を上昇する気泡の挙動は、超純水中を気泡が上昇する場合は、界面には何も吸着せず、気泡の上昇に対する抵抗力が小さくなり、上昇速度も溶解速度も速い。液体球という。それに対して汚れのある水中における気泡の場合は、界面に付着する不純物が界面の移動を妨げ、固体球のように振舞い、上昇速度は小さくなることが知られている。本実験結果に Stagnant Cap Model を適用し、多くの場合は固体球として振舞

うが、条件によっては固体球から液体球への遷移する場合があることを示している。二酸化炭素が超臨界、特に擬臨界となるような点の近傍(7.7 MPa, 33 °C)では、上昇を始める前に固体球となった液滴は、不純物が吸着して動かない部分が上昇によって徐々に減少し、液体球に近づく現象を確認している。この現象は従来の研究では見られなかった新たな現象である。

さらに、界面活性剤として用いられる微量のデカン酸を添加することによって吸着物質を特定し、さらに実験を行なっている。その結果、デカン酸を用いた実験においても液体球に近づく挙動を見せる時があることを示している。二酸化炭素の密度が 500 kg/m^3 前後の時に、液体球への遷移の度合いが強いことも確認された。

本研究の第2章、第3章は飛原英治、竹村文男、赤井誠、西尾匡弘との共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上のように、水や塩化ナトリウム水溶液に対する二酸化炭素の溶解度の測定および二酸化炭素の溶解した水溶液の粘性係数の測定によって、精度のよい相関式を導き、高圧下における液体や超臨界状態の液滴が水などの液体中を上昇する場合の溶解過程を実験と解析により明らかにしており、博士(環境学)の学位を授与できると判定する。