

01pC02

氷表面における Xe clathrate hydrate 結晶成長過程のその場観察 (II)

In situ Observation of Growing Xe Clathrate Hydrate Crystals on Ice Surface (II)

島田 亘¹、藤原裕己¹、長尾二郎²、海老沼孝郎²、成田英夫²¹ 富山大学 理学部 地球科学科, ² 産業技術総合研究所 メタンハイドレート研究ラボ

Wataru Shimada, Youki Fujiwara, Jiro Nagao, Takao Ebinuma, Hideo Narita

¹ University of Toyama, ² National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

In situ observation of growing Xe clathrate hydrate (Xe hydrate) crystal on ice surface was observed by Confocal Scanning Microscopy. We observed that Xe hydrate grew along the ice surface. We found that there is a groove between ice and Xe hydrate. This structure will be caused by diffusion of water molecules at the growth front.

はじめに

Gas clathrate hydrate はガス分子と水分子からなる結晶であるが、成長機構には不明な点が多い。特に氷にガス圧をかけて作成する場合、氷結晶から hydrate 結晶への固体-固体変換となるため、その成長は非常に困難であると考えられる。本研究では、-10°C, 1 気圧で安定な Xe hydrate (相図を Fig. 1 を示す) を用いて、氷表面での Xe hydrate 成長過程のその場観察実験を行った。

実験装置

観察には共焦点顕微鏡 (Lasertec 1HD200) を用いた。この顕微鏡ではステージを上下に動かしながら多くの画像を撮影し、焦点のあった部分を合成することにより全ての位置で焦点の合った画像を得ることができる。さらに、焦点が合った時のステージ高さ情報から表面の凹凸も測定可能である。

Fig. 2 に示すような低温高压セルを用いて、温度・圧力を調整しながら実験を行った。核生成は、平衡圧よりも過剰圧をかけることにより行った。

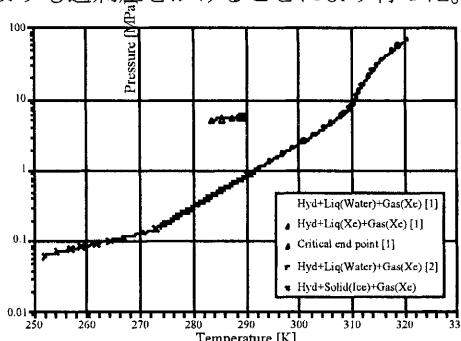


Fig. 1. Xe hydrate の平衡圧曲線 (×印が本研究での測定値)

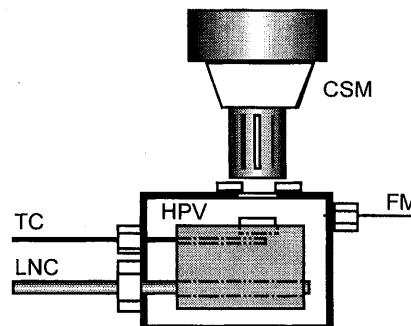


Fig. 2. 低温高压セル

実験結果

核生成した Xe hydrate は氷表面に沿って膜状に成長した。比較的過剰圧が小さい条件では四角形の Xe hydrate が成長する様子が観察された (Fig. 3)。さらに氷表面上の氷と Xe hydrate の境界を詳しく観察すると、Fig. 4 に示すように溝状の窪みが観察された (左が Xe hydrate、右が氷表面)。これは Xe hydrate が Xe ガスと水分子を吸い込むため、周囲の水蒸気圧が低くなり氷が蒸発したためであると考えられる。

講演では、Xe hydrate の平衡圧 (Fig. 1) 測定について述べ、さらに過剰圧と Xe-hydrate 結晶の成長形態について議論する。

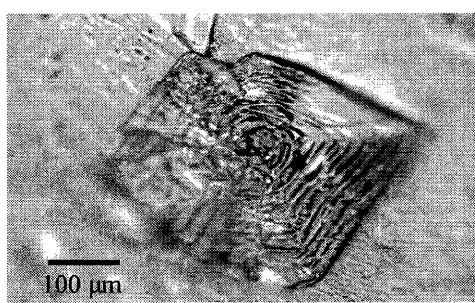


Fig. 3. 氷表面に核形成した Xe hydrate

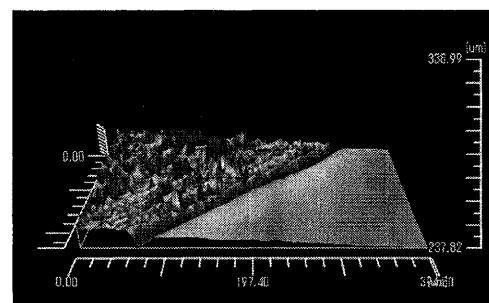


Fig. 4. 氷表面と Xe hydrate 境界の 3D 構造