OUKA
Osaka University Knowledge Archive

Title	Crystal Structure of Mixed Hydrates and Cage Occupancy of Guest Species
Author(s)	松本, 裕樹
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/34526
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　松　本　裕　樹　）	
論文題名	Crystal Structure of Mixed Hydrates and Cage Occupancy of Guest Species (混合ハイドレートの結晶構造とゲスト分子のケージ占有性)

論文内容の要旨

クラスレートハイドレートは、気体分子を包接し高密度化できること、比較的大きな分解エンタルピーを持つことから、気体貯蔵・輸送媒体や蓄熱媒体としての利用が期待されている。一般的にハイドレートの熱力学的安定条件は高圧・低温であり、ゲスト分子によって異なる。安定境界条件を緩和する一つの方法は、適切なゲスト分子を加え、二種類以上のゲスト分子が包接された混合ハイドレートを調製することである。例外的な構造を除いて、ハイドレートの結晶構造は、サイズの異なる二種類以上のケージから構成されており、二種類以上のゲスト分子からなる混合ハイドレート系は、純粋ハイドレート系と比較して複雑な相挙動・ケージ占有性を示す。したがって、混合ハイドレートを気体貯蔵・輸送媒体や蓄熱媒体として実用化するためには、混合ハイドレートの結晶構造、熱力学的安定性、ゲスト分子のケージ占有性などの基礎物性を明らかにすることが必要不可欠である。本論文では、水素、メタン、二酸化炭素など比較的小さいゲスト分子からなる純粋ハイドレート系の熱力学的安定条件を緩和する新規補助剤の探索を目的とし、混合ハイドレートが熱力学的に安定に存在する圧力・温度・組成関係や、結晶構造・各ゲスト分子のケージ占有性を、精密相平衡測定・粉末X線回折測定・ラマン分光分析の結果に基づいて明らかにした。特に、圧力・温度・組成などに依存する、競争占有、棲分占有、圧迫占有、複数占有などゲスト分子の複雑なケージ占有形態、ならびにそのケージ占有性が支配するハイドレートの構造相転移、共沸類似現象などの相挙動について明らかにしたことは重要な成果である。

様式7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　松　本　裕　樹　）		
	（職）	氏　名
論文審査担当者	主査　教授	岡野　泰則
	副査　教授	松村　道雄
	副査　教授	西山　憲和
	副査　准教授	佐藤　博

論文審査の結果の要旨

クラスレートハイドレートは、気体分子を包接し高密度化できること、比較的大きな分解エンタルピーを持つことから、気体貯蔵・輸送媒体や蓄熱媒体としての利用が期待されている。一般的にハイドレートの熱力学的安定条件は高圧・低温であり、ゲスト分子によって異なる。安定境界条件を緩和する一つの方法は、適切なゲスト分子を加え、二種類以上のゲスト分子が包接された混合ハイドレートを調製することである。例外的な構造を除いて、ハイドレートの結晶構造は、サイズの異なる二種類以上のケージから構成されており、二種類以上のゲスト分子からなる混合ハイドレート系は、純粋ハイドレート系と比較して複雑な相挙動・ケージ占有性を示す。したがって、混合ハイドレートを気体貯蔵・輸送媒体や蓄熱媒体として実用化するためには、混合ハイドレートの結晶構造、熱力学的安定性、ゲスト分子のケージ占有性などの基礎物性を明らかにすることが必要不可欠である。本論文では、水素、メタン、二酸化炭素など比較的小さいゲスト分子からなる純粋ハイドレート系の熱力学的安定条件を緩和する新規補助剤の探索を目的とし、混合ハイドレートが熱力学的に安定に存在する圧力・温度・組成関係や、結晶構造・各ゲスト分子のケージ占有性を、精密相平衡測定・粉末X線回折測定・ラマン分光分析の結果に基づいて明らかにした。特に、圧力・温度・組成などに依存する、競争占有、棲分占有、圧迫占有、複数占有などゲスト分子の複雑なケージ占有形態、ならびにそのケージ占有性が支配するハイドレートの構造相転移、共沸類似現象などの相挙動について明らかにしたことは重要な成果である。よって、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。