

報道関係者 各位

2014年7月18日

国立大学法人 東京農工大学  
国立大学法人 名古屋工業大学

## 沈殿反応により引き起こされる流体不安定対流の実証に世界で初めて成功

～地球温暖化対策につながる CO<sub>2</sub> 地中貯留技術の研究に貢献～

東京農工大学大学院工学研究院応用化学部門の長津雄一郎准教授、名古屋工業大学大学院博士前期課程 元学生 石井佑紀（現在、大学院を修了）、名古屋工業大学大学院 工学研究科物質工学専攻 多田豊教授は、ブリュッセル自由大学（ベルギー） 非線形物理化学部門 Anne De Wit 教授と共同で、「沈殿反応により引き起こされる流体不安定対流の実証」に世界で初めて成功しました。

これまで、多孔質媒質内で沈殿反応を伴う流動が存在すると、生成された沈殿により、流体が移動しにくくなる（これを浸透率の低下といいます。）と考えられていました。本研究は、従来、多孔質媒質内の流動を抑制すると考えられていた沈殿反応が、流体不安定対流<sup>\*1</sup>を引き起こす潜在能力があることを実証したものです。この発見は、種々の沈殿が流れの中で形成される化学や材料科学の分野、流体力学的不安定性、パターン形成などの物理分野、また多孔質媒質内の孔の閉塞が重要となる環境科学分野に重要な知見を与えるものです。特に、地球温暖化対策として期待されている CO<sub>2</sub> 地中貯留技術では、CO<sub>2</sub> を多孔質媒質である地層との沈殿化学反応により炭酸塩鉱物として固定化し、地下に確実に貯留する試みを実際になされており、本研究成果は、CO<sub>2</sub> 地中貯留技術の向上に今後必要とされる CO<sub>2</sub> 拡散の高精度予測方法の研究に大きな知見を与えるものです。本研究は日本学術振興会科学研究費補助金の援助を受けて行われたものです。

**本研究成果は、7月7日に米国物理学会の学術誌「Physical Review Letters」電子版に掲載されました。**

掲載誌：Physical Review Letters

論文名：Hydrodynamic Fingering Instability Induced by a Precipitation Reaction

著者：Y. Nagatsu, Y. Ishii, Y. Tada, and A. De Wit

掲載場所：<https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.113.024502>

**現状：**化学物質を含む流体が、多孔質媒質に侵入し、化学反応により、その多孔質媒質の固体を溶解すると、反応が起きた場所の浸透率が増加し、流れの抵抗が減少し、更に流動が促進する。この現象は反応性溶解流体不安定対流と呼ばれており、洞窟、カルスト地形の生成や石油採掘の際の油層の酸処理、等に関連していることから、この現象の化学反応と流動の物理に関して多くの研究がなされてきました。一方、逆のケース、つまり多孔質媒質内での化学反応による沈殿生成は浸透率の減少を招くので、流動を抑制すると考えられており、この現象の化学反応と流動の物理に関してはこれまでほとんど着目されていませんでした。

**研究成果：**多孔質媒質内の流動の最も単純な二次元モデルをヘレ・ショウセル内の流動で再現し（図1）、一つの反応物を含む溶液が別の反応物を含む溶液を A+B→C 型の沈殿反応を伴い置換するとき、沈殿反応が流体不安定対流を引き起こすことができることを実験的に示しました。更に、その特性は、化学種 A が化学種 B を置換する場合と、化学種 B が化学種 A を置換する場合で異なることを示しました（図2）。化学種の拡散・反応の影響を考慮した流体の易動度<sup>\*2</sup>分布に関する数学モデルを構築し、この流体力学的不安定対流は局在化する沈殿による浸透率の低下に起因する局所的な易動度の低下により引き起こされることを示しました。また本現象の反応・拡散・対流モデルの数値シミュレーションは、実験で観察された流体不安定対流の特性を再現できることを示しました。特に、シミュレーションにより、化学種 A と B の拡散係数の違いが沈殿反応により引き起こされる流体不安定対流の非対称な特性に寄与していることを提示しました（図3）。

**今後の展開：**本研究は、多孔質媒質内において沈殿反応により引き起こされる流体不安定対流の実証に世界で初めて成功したもので、多孔質媒質内における置換プロセスの安定性に及ぼす沈殿反応の影響の将来の詳細な解析に道筋をつけるものです。具体的には、ヘレ・ショウセルや実際の多孔質媒質内での種々の沈殿反応を伴う流れの実験、種々の透過率と沈殿の関数を用いた線形安定性理論や非線形シミュレーション、CO<sub>2</sub> 貯留技術のための炭酸塩を生成する CO<sub>2</sub> 沈殿反応実験、等を実施し、多孔質媒質内における沈殿反応を伴う流動・物質移動のより高精度なモデリングの構築を目指します。

語句解説

- ※1 流体不安定対流：流体の界面で生じた微小な乱れが増幅し、それにより対流が引き起こる現象を流体力学的不安定対流、もしくは流体不安定対流という。一方、生じた微小な乱れが減衰してゆく場合、流体力学的安定という。
- ※2 流体の易動度：多孔質媒質内での流体の流れやすさを表すものであり、多孔質媒質の浸透率を流体粘度で除したもの。

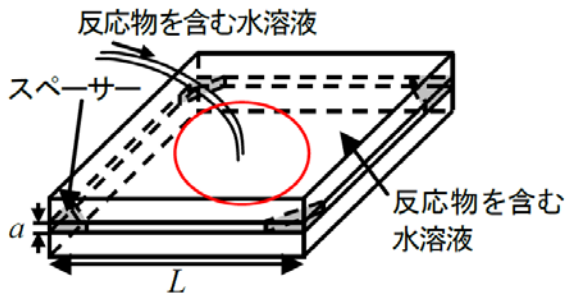


図1 ヘレ・ショウセル内での流体の置換 平板の大きさ  $L$  に比べて非常に狭い距離  $a (= 0.2 \text{ mm})$  だけ離れた設置された二枚の平行平板の隙間をヘレ・ショウセルという。反応物を含む水溶液を満たしたセルに別の反応物を含む水溶液を一点より注入すると、それらの境界は流体力学的に安定で円形に広がる。

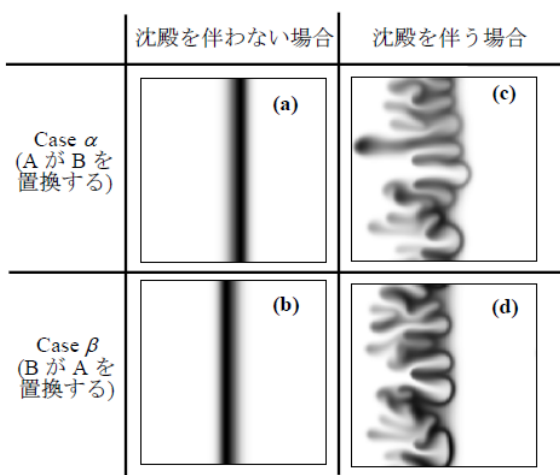


図3 化学反応を伴う置換の数値解析結果 置換の方向は左から右。生成物分布をグレースケールで表している。この数値計算では、化学種 A の拡散係数は化学種 B の拡散係数より 4 倍大きいとしている。A が B を置換する場合の方が、生成物が広く分布する。

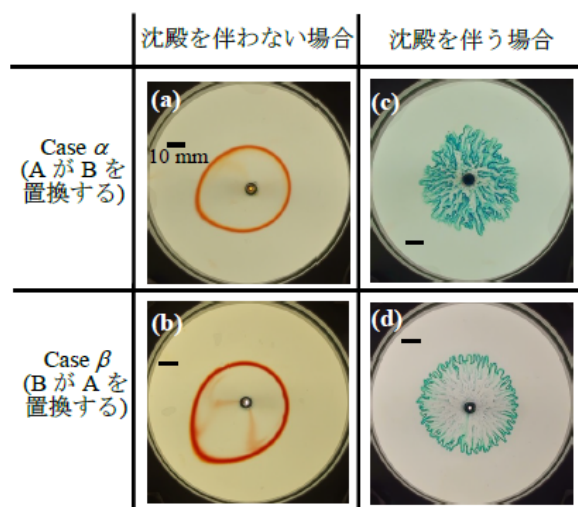


図2 化学反応を伴う置換パターン 置換開始 840 s 後。生成物が呈色している。(a)(b)沈殿を伴わない場合、流体力学的に安定な円形な置換パターンとなり、化学種 A が化学種 B を置換する場合も、B が A を置換する場合も、置換パターンは変わらない。(c)(d)沈殿を伴う場合、流体力学的不安定となり、Fingering (指状) パターンとなる。A が B を置換する場合と B が A を置換する場合で Fingering パターンの特徴は異なり、A が B を置換する場合、生成物が広く分布する。

◆ 研究に関する問い合わせ ◆

東京農工大学大学院 工学研究院  
 応用化学部門 准教授 長津 雄一郎  
 TEL/FAX : 042-388-7656  
 E-mail : [nagatsu@cc.tuat.ac.jp](mailto:nagatsu@cc.tuat.ac.jp)

名古屋工業大学大学院 工学研究科  
 物質工学専攻 教授 多田 豊  
 TEL/FAX : 052-735-5231/052-735-5255  
 E-mail : [tada.yutaka@nitech.ac.jp](mailto:tada.yutaka@nitech.ac.jp)