

氏名 松永 知佳

結晶性のアルミノケイ酸塩であるゼオライトは構造内に分子サイズオーダーのマイクロ孔を有し、以前から吸着材や触媒などとして広く使用されている材料である。近年では、そのマイクロ孔をより高度に利用する目的で、ゼオライトの膜化が活発に研究されている。中でも、ゼオライトの緻密配向膜は、優れたガス選択性を有する分離膜材やメンブレンリアクター、さらにはオプトエレクトロニクスへの展開が大いに期待されている材料である。しかしながら、配向性が制御されたゼオライト緻密膜の作製はいまだ研究の途上にある。学位論文提出者は、ゼオライト緻密配向膜作製のために、強磁場を用いた新しいプロセスを提案し、検討から得た知見を本論文に纏めている。本論文は6章で構成され、その内容は以下に要約される。

第1章では、本論文の研究背景を示した後、研究目的を明示し、検討対象としたモルデナイトとL型ゼオライトの材料学的特徴を詳述した。

第2章では、学位論文提出者が提案するプロセスに用いる懸濁液の調製法ならびに懸濁液の状態が粒子の配向性に与える影響を検討し、大きな凝集粒子が懸濁液中に存在すると、粒子配向はほとんど起きず、配向体を得るには懸濁液に対して適当な分級処理が必要であることを明らかにした。また、沈降による分級処理の時間と粒子の配向性の関係を丁寧に検討し、本研究で用いる懸濁液の調製条件を決定した。

第3章では、検討対象材料のモルデナイトの磁場配向挙動を検討し、モルデナイト結晶では**b**軸が磁化容易軸で、**c**軸が磁化困難軸であることを見出した。また、静磁場および回転磁場を伴った鋳込み成形によって、**b**軸および**c**軸がそれぞれ優先的に配向した成形体の作製に成功し、磁場印加法を工夫するでモルデナイトの配向制御が可能であることを実証した。

第4章では、モルデナイト粒子が単に集積した成形体から緻密体へと材料転化するための水熱反応条件を検討した。配向膜に対する検討の前に、無配向膜を前駆体として用いて検討を行った。その結果、組成 $6\text{Na}_2\text{O} : \text{Al}_2\text{O}_3 : 30\text{SiO}_2 : 3500\text{H}_2\text{O}$ からなる反応溶液中で 170°C 、48 時間処理した場合、膜は緻密化し、膜表面に新たな堆積層が形成されないことを明らかにした。検討結果を基に、配向膜に対して同様な検討を行い、水熱処理前に見られた配向性を保持した状態で膜が緻密化することを明らかにした。このように、結晶の磁気異方性にに基づきゼオライトの磁場配向挙動を制御し、さらに水熱固化条件を調整すると、所望の配向性を有するゼオライトの緻密膜が作製できることをはじめて明示した。

第5章では、第4章までの検討結果を受け、モルデナイトよりも異方性が大きいL型ゼオライトに対して配向膜作製を検討した。分級処理を施した懸濁液を用い、L型ゼオライトの磁場配向挙動を検討した結果から、L型ゼオライトは磁場印加方向に沿って**c**軸配向性を示すことを見出した。検討結果を受け、磁場中電気泳動堆積法で多孔質基板上に**c**軸が優先配向した厚さ $3\ \mu\text{m}$ 程度のL型ゼオライト膜を得ることに成功した。

第6章では、第1章から第5章までの知見を整理し、本研究を総括した。

以上に述べたように、本学位論文に示された知見は、所望の配向性を有するゼオライト緻密膜作製を可能とする、強磁場を利用した新しいプロセス技術の開発の指針になるものである。ゼオライトの緻密配向膜は多方面で応用が期待されている材料であり、本学位論文に示された知見はゼオライト膜作製における今後の展開に資するところ大と言える。よって、本論文は博士論文として学位授与に値するものと判定した。

最終試験の結果の要旨

審査委員会は、学位論文提出者に対して該当論文の内容および関連分野全般について諮問を行った。その結果、論文提出者は当該研究分野および周辺領域について十分な知識と理解力を有していると判断した。また、学位論文提出者は、該当論文の内容の一部を国際的な学術雑誌の論文 4 編として公表しており、さらに国際会議発表 4 件、講演会発表も 5 件以上行っている。これらは、産業創造工学専攻マテリアル工学講座で定める学位認定基準を十分に満たしている。審査委員会は、当該分野の研究者としての十分な研究遂行能力を持ち、外国語による論文作成能力および口頭発表能力についても、研究者として十分な能力を持つと判定し、最終試験を合格とした。

審査委員	産業創造工学専攻マテリアル工学講座	教授	松田	元秀
審査委員	産業創造工学専攻マテリアル工学講座	教授	連川	貞弘
審査委員	産業創造工学専攻物質生命化学講座	教授	町田	正人
審査委員	産業創造工学専攻マテリアル工学講座	准教授	横井	裕之