

氏名	清 家 崇 広
授与した学位	博 士
専攻分野の名称	工 学
学位授与番号	博甲第2751号
学位授与の日付	平成16年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科エネルギー転換科学専攻 (学位規則第4条第1項該当)
学位論文の題目	高機能性ゼオライト膜の組織化制御に関する研究
論文審査委員	教授 三宅通博 教授 三浦嘉也 教授 吉尾哲夫 助教授 松田元秀

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

近年、環境問題への危惧から、材料開発において高い機能性と無害性を併せもつ環境調和型材料が要望されている。中でもゼオライト膜は、均一なナノ細孔を有し、分子ふるい性など様々な特性を示すことから、大きな注目を集めている。しかし、従来の製膜法で得られるゼオライト膜は、不均質な厚膜であり、期待されているほどの特性を示さない。

本研究では、高機能性ゼオライト膜の実現を目指し、独自のコンセプトに基づき提案した3つの新規ゼオライト膜作製法について種々検討した。以下に概要を示す。

- 1) 電気泳動堆積法を用い、ゼオライト種粒子からなる前駆体膜を成形した後、水熱処理を施すことで、緻密なゼオライト膜の作製に成功した。電気泳動過程において印加電圧と堆積時間を調整することで、膜厚を5~50 nmの範囲に制御した均一な前駆体膜を得た。水熱処理において前駆体膜は、種粒子の2次的成長、および粒子間隙で新たに生成した微粒子の成長により、緻密膜に変化することが分かった。得られたゼオライト膜 (FAU膜) は、CO₂/N₂選択率 = 34を示し、現在までに報告されている中でも最高レベルの二酸化炭素分離性能を有した。
- 2) ゼオライト骨格を誘発する有機構造指向剤を基板上に固定化した後、水熱処理を行うことでゼオライトの薄膜化を図った。有機構造指向剤をカルボキシル基を介して固定化することで、室温の水中でも安定な修飾層を得た。しかし、その修飾層は水熱条件下で崩壊し、目的のゼオライト膜は得られなかった。
- 3) アルカリ熱水中で緩やかに溶解する固体状ケイ酸ガラスを原料として用い、水熱処理を行った結果、高緻密性、高配向性、およびナノスケールの膜厚を併せもつゼオライト膜 (MFI膜) の作製に成功した。MFI膜のb軸配向化は、原料ケイ酸ガラスの溶解を遅くすることで達成され、原料ケイ酸ガラスの溶解速度が1.30 g h⁻¹L⁻¹の条件下で、膜厚が約170 nmの非常に薄いb軸配向性MFI膜が得られた。

論文審査結果の要旨

代表的な環境調和型材料として知られるゼオライト膜は、均一なマイクロ孔構造と優れた分子認識性を有することから、ガス分離膜やセンサー材料として高い特性が期待される魅力的な膜材料である。しかし、従来の製膜法では、不均質な厚膜しか得られないため、その特性は期待されるよりも遥かに低く、実用化には程遠いのが現状である。

本論文は、高機能性ゼオライト膜の実現を目指し、3種類の組織化制御法と得られた膜の評価、ならびに膜組織化機構について論じたものである。第1の手法では、電気泳動堆積法を用いゼオライト種粒子からなる前駆体膜を作製した後、水熱緻密化処理を施すことで、高緻密なゼオライト膜の作製に成功した。さらに、この手法で得られたFAU型ゼオライト膜は、世界最高レベルの二酸化炭素分離性能を示すことを明らかにした。第2の手法では、ゼオライト構造を誘発する構造指向剤の規則配列を作製した後、水熱処理を施すことで、ゼオライトの超薄膜化を図ったが、水熱処理において構造指向剤の配列が崩壊し、目的のゼオライト膜が得られなかった。第3の手法では、固体状ガラスをゼオライト成分源とし、水熱処理における緩やかな溶解を利用することで、高緻密かつ高配向なゼオライト薄膜の作製に成功した。さらに、得られた膜構造および溶液状態の変化から、3段階の反応からなる膜組織化機構を提案した。

このように本論文は、ゼオライト膜の組織化制御について検討を行い、特に第3の手法(固体状原料の溶解を利用した製膜法)により、比類なき高緻密性、高配向性、ナノメートル薄膜を有するゼオライト膜の作製に成功している。本研究の成果は、高温ガス分離膜や高選択性センサーなどへの応用が期待される高機能性ゼオライト膜の実現に向けて、大いに貢献するものと認められる。

以上、論文の内容、論文発表会、参考論文を総合的に審査した結果、本論文は博士(工学)の学位に値するものと認められる。