

氏 名	にし はら ひろ とも 西 原 洋 知
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	工 博 第 2548 号
学位授与の日付	平 成 17 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 化 学 工 学 専 攻
学 位 論 文 題 目	氷晶テンプレート法を用いた多孔質材料のナノ構造とモルフォロジーの 同時制御に関する研究

論文調査委員 (主 査)
教 授 田 門 肇 教 授 前 一 廣 教 授 宮 原 稔

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は多孔質材料のナノ構造とモルフォロジーを同時制御する手法の確立を目的として、氷晶テンプレート法を新たに提案するとともに、種々の材料において本法の有用性を確認し、ナノ構造とモルフォロジーを同時制御した多孔質材料を作製しその特性評価を行った一連の研究をまとめたものであって、全9章より構成されている。

第1章は序論であり、多孔質材料の特性をそのナノ構造とモルフォロジーの観点から論じ、多孔質材料の更なる高性能化を実現するにはこの両者の包括的な同時制御が必要不可欠であることを指摘している。続いて多孔質材料のナノ構造を高度に制御可能であるゾルーゲル法と、多孔質材料のモルフォロジーの制御技術であるテンプレート法について概説し、凍結ゲル化法が新たなテンプレート法として利用可能であることを提示している。さらに、本論文の目的であるゾルーゲル法と凍結ゲル化法を融合して開発した氷晶テンプレート法による多孔質材料のナノ構造とモルフォロジーの包括的な同時制御の可能性について言及し、本論文の構成と内容について概説している。

第2章では氷晶テンプレート法におけるモルフォロジー形成法として、ゾルや湿潤ゲルを一定の温度勾配において一定速度で凍結することにより氷晶を擬定常成長させる一方向凍結ゲル化法を提案し、本法をシリカゾルやシリカ湿潤ゲルに適用した場合に形成されるモルフォロジーについて検討している。その結果、一方向凍結ゲル化法によってラメラ、平板状繊維、マイクロハニカム、多角形状繊維、微粉末の5種類のモルフォロジーが形成可能であり、また前駆体におけるシリカコロイド粒子やシリカ骨格の運動を制限する因子を軸にとりて形状をマッピングした形状マップを作成することにより、所望のモルフォロジーをもつシリカゲルを合成できると結論付けている。

第3章では氷晶テンプレート法によって作製したシリカゲルのナノ構造について詳細に検討し、本法が試料のナノ構造を破壊することなく優れたモルフォロジーを形成可能な手法であることを確認している。また、試料作製の各工程が最終的に得られるシリカゲルのナノ細孔特性に及ぼす影響を明らかにしている。

第4章では氷晶テンプレート法を用いたシリカゲルマイクロハニカム(SMH)のモルフォロジー(ハニカム開口径とハニカム壁厚)とナノ細孔特性の同時制御について検討し、凍結条件、原料組成、エージング条件等の調節により、SMHのモルフォロジーとナノ細孔特性がそれぞれ独立に制御可能であることを示している。また、ナノ細孔特性がSMHの耐熱性に及ぼす影響についても検討している。

第5章では氷晶テンプレート法を用いて作製した、チタニアクライオゲル繊維(TCF)のモルフォロジー、ナノ細孔特性、結晶構造について詳細な検討を行い、優れたモルフォロジーとナノ構造を有するTCFが高い光触媒性能を有することを明らかにしている。

第6章では、2段階ゲル化法によって合成される二元系金属酸化物であるチタニア-シリカゲルに氷晶テンプレート法を適用し、チタニア-シリカゲルマイクロハニカム(TSMH)を作製した。また、TSMHのナノ細孔特性や結晶構造について検討を行い、TSMHが優れたナノ構造に由来する高い光触媒能を有すると結論付けている。

第7章では、共ゲル化法によって合成される二元系金属酸化物であるシリカーアルミナゲルに氷晶テンプレート法を適用し、シリカーアルミナゲルマイクロハニカム（SAMH）を作製した。また、SAMHのナノ細孔特性や結晶構造について検討を行い、SAMHがブレンステッド酸点を有することを確認している。

第8章では、有機ゲルの一種であるレゾルシノールホルムアルデヒド（RF）ゲルに氷晶テンプレート法を適用することによる、種々のモルフォロジーを有するRFクライオゲルの作製について検討している。また、RFクライオゲルマイクロハニカムを不活性雰囲気下で炭化することによりRFカーボンクライオゲルマイクロハニカム（CMH）が作製可能であり、凍結条件、原料組成、エージング条件によりCMHのモルフォロジー（ハニカム開口径とハニカム壁厚）とナノ細孔特性はそれぞれ独立に制御可能であると結論付けている。

最後に第9章において、本論文で得られた成果や今後の展望をまとめている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、多孔質材料のナノ構造とモルフォロジーの同時制御法の確立を目的として、ゾルーゲル法と一方向凍結法を組み合わせた氷晶テンプレート法を新たに提案し、種々の材料のナノ構造とモルフォロジーの同時制御に関する一連の研究をまとめたものであり、得られた主な成果は以下の通りである。

1. 種々の条件で合成したシリカゾルやシリカ湿潤ゲルの一方向凍結によって形成されるモルフォロジーについて検討した結果、シリカコロイド粒子やシリカ骨格の運動が制限されるに従い、ラメラ、平板状繊維、マイクロハニカム、多角形状繊維、微粉末の5種類の異なるモルフォロジーが形成されることが分かった。また、所望のモルフォロジーをもつ材料を合成するための形状マップを提示した。
2. 作製したシリカゲルのナノ構造について詳細に検討した結果、氷晶テンプレート法は試料のナノ構造を破壊することなく、モルフォロジーを制御できる有用な手法であることが分かった。また、氷晶テンプレート法における試料作製条件や原料組成がナノ細孔特性に及ぼす影響を明らかにした。
3. シリカゲルマイクロハニカム（SMH）のモルフォロジーとナノ細孔特性の精密な同時制御について検討した結果、SMHのハニカム開口径やハニカム壁厚は凍結条件や原料溶液の溶質濃度によりナノ細孔特性とは独立に制御でき、SMHのナノ細孔特性は解凍後のアンモニア水溶液中でのエージングによりハニカム開口径やハニカム壁厚とは独立に制御できることを検証した。
4. シリカ以外の物質に氷晶テンプレート法を適用することにより、優れた結晶構造とナノ細孔特性、高い光触媒能をもつチタニア繊維、高いチタン分散性と高い光触媒能を示すマイクロハニカム状チタニアシリカ、アルミナの分散性が高くブレンステッド酸点をもつマイクロハニカム状シリカーアルミナの作製に成功した。また、有機ゲルの一種であるレゾルシノールホルムアルデヒドゲルへも氷晶テンプレート法を適用し、マイクロハニカム状や繊維状のカーボンを作製できることが分かった。

以上要するに、本論文は、種々の材料のナノ構造とモルフォロジーの同時制御法を確立するために、氷晶成長をテンプレートとして利用する簡便かつ斬新な多孔質材料設計手法を提案し、実際に様々な材料において本法の有用性を実証したものである。これらの結果は、多孔質材料の開発に有益な知見を提供するものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成17年2月17日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。