

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)	氏名	YU XIN
学位授与の要件	学位規則第4条第1・2項該当		
論 文 題 目			
Development of bis(triethoxysilyl)ethane (BTESE)-derived organosilica membranes: thermal and oxidation stability, gas permeation properties, and application to membrane reactor (有機無機オルガノ BTESE 膜の作製:耐熱性, 耐酸性, ガス透過特性, および膜反応への応用)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	都留 稔了	印
審査委員	教 授	福井 国博	印
審査委員	准教授	金指 正言	印
審査委員	准教授	姜 舜徹	印
〔論文審査の要旨〕			
<p>本論文では, bis(triethoxysilyl)ethane (BTESE)をシリコン前駆体とするオルガノシリカ多孔膜において, 高透過性膜の開発を行うとともに, 耐熱性および耐酸化性の評価とその向上を行った。さらに, 耐酸性として三酸化イオン(SO₃)への安定性評価と材料スクリーニングを行い, 水の熱化学分解サイクルであるヨウ素硫黄プロセス(IS プロセス)を構成する SO₃ 分解反応へ膜反応器の適用を行った。</p> <p>第1章“General introduction”では, まず膜分離法の概要を述べ, 無機材料とくにオルガノシリカ膜による気体分離についてまとめた。さらに, SO₃ 分解反応にオルガノシリカ膜を適用する際に必要となる膜特性をまとめることで, 本研究論文の位置づけを明確にした。</p> <p>第2章“Network engineering of a BTESE membrane for improved gas performance via a novel pH-swing method”では, BTESE ゾルの調製に pH swing 法を提案した。これまで BTESE は酸触媒のみを用いて加水分解および縮重合反応が行われていたが, 酸→アルカリ→酸と pH を swing することで, ゾルサイズを成長させることに成功した。pH swing ゾルでは中間層細孔へのゾル浸透が低減されたため透過率が向上しただけでなく, 透過率比が酸触媒ゾルとほぼ同一であったことから, ネットワークサイズは変化していないことが明らかとなった。さらに, シロキサン結合が高度に形成されたことで耐熱性が向上したことが, 各種の分析から示された。</p> <p>第3章“Improved thermal and oxidation stability of bis(triethoxysilyl)ethane (BTESE)-derived membranes, and their gas-permeation properties”では, pH swing 法で調製したゾルを用い, 耐熱性および耐酸化性の評価と向上を目的とした。従来法では, BTESE 膜は有機架橋基の分解温度以下であ</p>			

る 300°Cレベルで焼成が行われていたが、本研究では不活性雰囲気下で 500—700°Cで焼成を行った。高温で焼成するほど、オルガノシリカネットワークは緻密化し、気体選択性は向上することを見出した。さらに、耐酸化性も向上することを見出し、窒素雰囲気 550°Cで製膜した BTESE 膜は、空気 550°C 暴露後も水素／窒素透過率比 > 100, 水素／四フッ化炭素透過率比 > 2000 を示した。FTIR, EPMA, 窒素吸着などからも、耐熱性と耐酸化性の向上が明らかとされた。

第4章“Chemical stability of SiO₃-based separation membrane and application to O₂/SO₃ separation”では、SO₃との膜材料の安定性を検討した。各種粉末材料を SO₃ 暴露することで、SO₃ が Zr と反応沈着すること、中間層の透過抵抗増大となること、さらに抵抗増大には細孔径依存性があることを明らかとした。開発した膜を SO₃ の膜反応器に用い、SO₃ 分解反応が平衡転化率を上回ることを明らかとした。

第5章“Conclusions and Recommendations”では、本論文の総括を行った。

以上、審査の結果、本論文の著者は博士(工学)の学位を授与される十分な資格があるものと認められる。

備考：審査の要旨は、1,500 字以内とする。