

## 論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 ( 工 学 )	氏名	SULAIMAN OLADIPO LAWAL
学位授与の要件	学位規則第4条第1・2項該当		
論 文 題 目			
Tailoring the microporous structure of a ceramic composite for development of molecular sieving membranes (セラミック複合物のマイクロポラス制御による分子ふるい膜の開発)			
論文審査担当者			
主 査	准教授	金指 正言	印
審査委員	教 授	都留 稔了	印
審査委員	教 授	大下 浄治	印
審査委員	教 授	福井 国博	印
〔論文審査の要旨〕			
<p>本論文では、化学的に安定で耐熱性を有する <math>\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2</math> 複合酸化物をベースにマイクロポラス構造を制御した新規分子ふるい膜の開発を研究目的とした。<math>\text{ZrO}_2</math>の結晶化を抑制するために、アセチルアセトンやアリルアセトアセテートなどの有機キレートが <math>\text{Zr}</math> 前駆体に配位結合させ、マイクロポラス構造、気体透過特性に及ぼす影響について検討した。また、アモルファス構造内の有機キレートを所定の条件で賦活処理することでカーボン化させた <math>\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2\text{-carbon}</math> 膜の気体透過特性について検討した。</p> <p>第1章“General introduction”では、分離膜の概要と気体分離に有用なシリカおよびセラミック複合膜を紹介し、材質ごとの特徴、透過機構をまとめた。さらに、セラミック複合酸化物で、有機キレートをを用いた細孔径制御に関する先行研究を総括し、本研究論文の位置づけを明確にした。</p> <p>第2章“Development of a molecular sieving membrane from an acetylacetonate-modified silica-zirconia ceramic composite”では、<math>\text{Zr}</math> 前駆体にアセチルアセトンを配位結合させ、アセチルアセトンが <math>\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2</math> 複合酸化物のマイクロポラス構造、気体透過特性に及ぼす影響について検討した。アセチルアセトンを配位結合させることで、高 <math>\text{Zr}</math> 含有 <math>\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2</math> 膜では Knudsen 比程度であった <math>\text{H}_2/\text{SF}_6</math> 透過率比が 7000 以上を示し、分子ふるい膜の作製が可能であることを明らかにした。</p> <p>第3章“Microstructure engineering of ligand-modified silica-zirconia membranes derived from network-forming precursors”では、有機キレート剤にアセチルアセトンとアリルアセトアセテートを用い、<math>\text{Si}</math> 前駆体に 3-(トリメトキシシリル)プロピルメタクリレートを用いた。<math>\text{Zr}</math> を修飾したアリルアセトアセテートと <math>\text{Si}</math> 前駆体に含まれる不飽和結</p>			

合の有機架橋反応がマイクロポーラス構造, 気体透過特性に及ぼす影響について検討した。 $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$  構造内で有機架橋反応が進行するほど, 多孔的な構造形成が可能で, より分子ふるい性の高い分離膜の作製が可能であることを明らかにした。

第4章 “Enhanced  $\text{H}_2$ -permselectivity in a carbon-silica-zirconia membrane derived from an acetylacetonate-ceramic composite pyrolysis” では, アモルファス構造内のアセチルアセトン を所定の条件で賦活処理することでカーボン化させた。 $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$  複合酸化物における  $\text{Si/Zr}$  比によって,  $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2\text{-carbon}$  膜の気体透過特性が異なることが明らかになり,  $\text{Zr}$  含有量が少ない  $\text{Si/Zr}=9/1$  場合では, 従来の  $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$  ( $\text{Si/Zr}=9/1$ ) と比較して  $\text{H}_2$  選択透過性が大きく向上することを明らかにした。

第5章 “ $\text{CO}_2$  flow-switching behavior in a pyrolysis-derived carbon-silica-zirconia membrane promises a versatile high temperature  $\text{H}_2/\text{CO}_2$  separation” では,  $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2\text{-carbon}$  ( $\text{Si/Zr}=1/1$ ) 膜の  $\text{CO}_2$  透過特性について検討した。 $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$  構造内の carbon 粒子により  $\text{CO}_2$  に対して静電的相互作用が働くことが明らかになり, 高温下においても  $\text{CO}_2$  の吸着性が  $\text{H}_2$  透過性に影響を与えた。また,  $\text{CO}_2$  透過率には供給側の圧力依存性があり, 400 kPa 以上の圧力で透過性が大きく向上することを明らかにした。

第6章 “Conclusions and consideration for future studies” 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。