

## 論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 （ 工 学 ）	氏名	RANA IKRAM
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項・ 2 項該当		
論 文 題 目			
Development of fluorine induced microporous silica membranes for carbon dioxide separation (CO <sub>2</sub> 分離のためのフッ素含有シリカ系多孔膜の開発)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	金 指	正 言
審査委員	教 授	都 留	稔 了
審査委員	教 授	福 井	国 博
審査委員	教 授	大 下	浄 治
〔論文審査の要旨〕			
<p>本論文では、アモルファス構造で製膜性に優れるシリカ系多孔材料をベースにマイクロポーラス構造を制御した CO<sub>2</sub>分離膜を開発することを研究目的とした。従来の H<sub>2</sub>分離に適したシリカネットワーク構造をルースに制御するために、フッ化物イオンのドーピングを提案し、CO<sub>2</sub>透過特性、水熱安定性に及ぼす影響について検討した。また、CO<sub>2</sub>親和性に優れる第 1 級アミンを有する 3-aminopropyltriethoxysilyl (APTES)と tetraethoxysilane (TEOS) をハイブリッドしたオルガノシリカ構造を形成する際に酸触媒として trifluoroacetic acid (TFA)を用いることで、フッ素源が細孔径制御性、CO<sub>2</sub>吸着特性に及ぼす影響を検討した。</p> <p>第 1 章 “General introduction” では、CO<sub>2</sub>分離技術の概要と CO<sub>2</sub>分離膜として有機高分子膜、促進輸送膜、カーボン膜、ゼオライト膜などを紹介し、材質ごとの特徴、透過機構をまとめた。さらに、アモルファスシリカを用いた CO<sub>2</sub>分離膜の細孔径制御技術、CO<sub>2</sub>吸着性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 “Tailoring the structure of sub-nano silica network via fluorine doping to enhance CO<sub>2</sub> separation and evaluating CO<sub>2</sub> separation performance under dry or wet conditions” では、Si 前駆体に TEOS、フッ素源に ammonium fluoride を用い、ドーピング量が CO<sub>2</sub>透過特性、水熱安定性に及ぼす影響について検討した。CO<sub>2</sub>透過率はドーピングする F 濃度とともに向上したが、CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>選択性は低下し、CO<sub>2</sub>選択透過性はトレードオフの関係であった。また、F 濃度が高くなるほど Si-OH 基が疎に制御されるため水熱安定性が向上することを明らかにした。</p>			

第3章 “The effect of C/Si ratio and fluorine doping on the gas permeation properties of pendent-type and bridged-type organosilica membranes” では、フッ素源に ammonium fluoride, Si 前駆体に C/Si 比=0.5-3 の橋架け型と側鎖型のオルガノシリカを選定し、フッ化物イオンが橋架け型, 側鎖型オルガノシリカ構造の疎水化, 細孔径制御性に及ぼす影響について検討した。側鎖型オルガノシリカにおいても F ドープ量の増加に伴い, 多孔性が向上する傾向が示唆されたが, F ドープによるマイクロポーラス構造の変化が橋架け型オルガノシリカと比較して小さいことが明らかになった。

第4章 “Catalytic effect of trifluoroacetic acid on the CO<sub>2</sub> transport properties of organic-inorganic hybrid silica membranes” では, APTES と TEOS をハイブリッドしたオルガノシリカ膜に, 酸触媒として TFA を用いることで, フッ素源が細孔径制御性, CO<sub>2</sub>透過, 吸着特性に及ぼす影響について検討した。TFA を用いることで, APTES 内の CO<sub>2</sub> 吸着サイトである Si-C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>NH<sub>2</sub> 基が Si-C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>NHCOCF<sub>3</sub> 基に置換されることで, TEOS-APTES 構造の多孔化, CO<sub>2</sub> 吸着性をマイルドに制御可能であった。これにより, 低温で CO<sub>2</sub> 選択透過性が向上することを明らかにした。

第5章 “Conclusions and outlook” 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。