

## 審査の結果の要旨

氏名 脇原 徹

ゼオライトは、一般に反応性の高いアルミノシリケートを高塩基性の水熱条件下で反応させることにより合成される。しかしアルミノシリケート溶液中のアルミノシリケート種は複雑に重合しており、どのような構造のアルミノシリケート種が結晶化に寄与しているかに関する解析は困難である。また、希薄アルミノシリケート溶液中でも結晶成長するが、どのような構造の前駆体が結晶成長に寄与しているか、十分に解明されていない。よって、現在ゼオライトは、原料組成、温度、合成時間等の因子の生成物に対する影響が解明されないまま、経験的な知識をもとに生産されている。故に、原子レベルの反応機構の理解に基づいた、ゼオライト結晶化に寄与するアルミノシリケート種の解明が望まれている。本論文は"Elucidation and Control of Aluminosilicate Species Contributing to Zeolite Crystallization"(和訳「ゼオライト結晶化に寄与するアルミノシリケート種の解明及びその制御」)と題し、ゼオライト結晶化に寄与するアルミノシリケート種を解明、制御することを目的としたもので、5章からなる。

第1章は序論であり、ゼオライト合成の現状と問題点を明らかにし、諸問題の解決を図るべく研究目的を設定している。具体的には、研究対象を濃厚アルミノシリケート相と希薄アルミノシリケート溶液相に分け、前者を強力X線回折により、後者を原子間力顕微鏡(AFM)により考察することを示してある。

第2章では、濃厚アルミノシリケート相の構造解析について述べている。具体的には、既往の分析装置では解明することが不可能であった濃厚アルミノシリケート相の構造を、高エネルギーX線回折データをフーリエ変換することにより得られる実空間のサブナノメートルオーダーの情報から明らかにしている。

第3章では、第2章の結果を踏まえ、希薄アルミノシリケート溶液中に溶存する、ゼオライト結晶成長に寄与するアルミノシリケート種に関する考察を行っている。具体的には、AFMの同一視野観察によりゼオライト結晶表面の変化を詳細に調べ、結晶成長に寄与するアルミノシリケート種に関する考察を行っている。

以上、第2章、第3章ではゼオライト結晶化に寄与するアルミノシリケート種の解明に関する研究を行っている。

第4章では、積極的に希薄アルミノシリケート溶液を利用することにより、今までにない新規形態・構造の作製を試みている。まず、希薄アルミノシリケート溶液中に種結晶(フォージャサイト及びA型ゼオライト)を浸すと、表面に付着したアモルファスが溶解し、清浄な表面が得られることを示している。

これはゼオライトの表面の周期的な凹凸を配列場として用いる基盤技術となるばかりでなく、ゼオライト表面のアモルファスを取り除き、吸着、触媒特性を向上させる知見となり得る。次に、同じ面構造をもっているが積層順序が異なるゼオライトをヘテロエピタキシャル成長させ、互いの細孔を接合し、配向膜を作製している。その結果、基板に対し細孔が完全に垂直方向を向いているカンクロナイト配向薄膜の作製に初めて成功している。また、周期的な規則的織目模様をもつチャバサイト配向薄膜は、チャバサイトのヘテロエピタキシャル成長とチャバサイトのツイン形成で説明できることを示している。

第5章では、第4章までの研究成果を総括するとともに、将来の展望をまとめている。

以上、本論文はゼオライト結晶化に寄与するアルミノシリケート種を独創的な手法で解明し、その素性を原子レベルで明らかにした上で、新規形態・構造のゼオライトを作製しており、化学システム工学の発展に寄与するところが大きい。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。