

審査の結果の要旨

氏名 南 雲 亮

本論文は、「計算化学的手法を利用したゼオライト膜性能推算法に関する研究」と題し、全7章から構成されている。主に古典統計力学の立場から、ゼオライト細孔内ゲスト分子の拡散係数や透過係数を理論的に予測するための方法論を提案している。

第1章は緒論であり、本論文の背景、先行研究との関連性および本研究の目的が述べられている。まず、既往の研究を例に、ゼオライト膜性能の近年の大幅な向上に言及して、計算化学的手法による性能推算を目指す意義を明確に示している。続いて、推算法の開発を進める上で克服すべき諸課題を列挙している。特に解決すべきは、現状の計算機性能ではシミュレートが困難な、ナノ細孔内ゲスト分子の『遅い拡散』現象の追跡をいかにして実現するか、この点にあることを強調している。

第2章では、膜性能推算法を開発する上での基礎となる、ナノ細孔内ゲスト分子の輸送現象論を詳述している。さらに、これらの諸理論に基づき、計算化学的手法から、ゲスト分子の拡散係数を計算した結果を示している。これにより、計算化学的手法をナノ細孔内輸送現象に対して適用する意義を実証しているが、本章の計算対象は、従来の方法論による追跡が十分可能な時間オーダーに含まれる拡散系である。すなわち、『遅い拡散』現象ではなく、『速い拡散』の系を対象としているに過ぎない。従って、本章を基盤としながらも、次章以降では、『遅い拡散』現象への適用範囲の拡大を図るべき必要性を論じている。

第3章では、『遅い拡散』現象における拡散係数の定量法としても近年有望視されている、『遷移状態理論(TST)』を詳述している。TSTは既に、細孔内ゲスト分子の濃度が均一な『自己拡散現象』において、その有用性を幅広く発揮しているが、本章の前半でも、ゼオライト細孔内の自己拡散現象を対象に、拡散係数や熱力学的諸量の計算結果を示している。これにより、TSTを用いる利点を論じた上で、本章の後半では、ゲスト分子の濃度が必ずしも均一ではない『輸送拡散現象』においても、TSTが大きな威力を発揮する可能性を示している。従って、本章の結果は、輸送拡散現象の高精度かつ系統的なモデリングの実現に向け、その端緒を開くものである。

第4章では、ナノ細孔内ゲスト分子の『遅い』自己拡散現象を対象として、拡散速度の予測を実現する方法論を提案している。具体的には、古典統計力学に基づき、自由エネルギーの温度依存性を予測するアプローチである。その予測結果をTSTに組み込むことで、『遅い拡散』現象においても、拡散速度の高精度な予測を達成した結果を、系統的に示している。本論文では、これら一連の成果を、次章以降で拡散係数や輸送定数を定量する際の、根幹をなすものとして位置づけている。

第5章では、第4章で既述した方法論に基づき、細孔内ゲスト分子の自己拡散係数の予測結果を提示している。これら一連の結果は、従来は定量が不可能だと考えられていた『遅い拡散』系においても、高精度かつ系統的な自己拡散係数の推算が実現することを示すものである。

第6章では、第4章で既述した方法論を活用し、細孔内ゲスト分子の輸送拡散係数の定量を行っている。この結果を、第2章に詳述した輸送現象論に適用することで、ゼオライト膜性能を推算している。本章に示す結果は、『遅い拡散』現象の範疇に含まれるような系においても、輸送現象論および古典統計力学理論を駆使することで、ゼオライト膜性能の推算が実現することを示すものである。

第7章では、本論文の研究成果を総括し、その意義を明確に位置づけている。その上で、本論文の研究成果を基盤としながら、当該分野における将来的な展望を俯瞰している。

以上に示す通り、本論文は、『ナノ細孔内ゲスト分子の輸送現象』を対象として、拡散係数および輸送定数の高速推算をいかにして達成すべきか、この一点に的を絞り、論を展開している。その結果、従来型の方法論と比較した場合、4-5桁程度も低いオーダーの拡散係数や輸送定数に対しても、系統的な推算を実現した。これら一連の結果は、本論文で提案する予測法の適用範囲が、『遅い拡散』現象の時間オーダーまでも、十分に内包する事実を示している。これは、古典統計力学に基づく分子レベルの挙動解析から、ナノ細孔内ゲスト分子の拡散係数や透過流速など、プロセス設計の指針として不可欠な物性値の予測を達成したことを意味する。換言すれば、本論文で提案する推算法は、分子・原子レベルでのマイクロな情報を、工学的重要度の高いマクロな物性値へと、ボトムアップで変換する方法論の具体例である。従って、『マイクロ』と『マクロ』を有機的に体系化する『化学システム工学』の概念の具体化にも、幅広く貢献するアプローチとして位置づけられる。

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。