

論文審査の結果の要旨

氏名 黄 峻浩

本論文は、ナノスケールの空間に特有のイオン移動現象について、規則性ナノ細孔を用いたイオン移動の実験計測と理論解析からそのメカニズムを明らかにすることを目的とする。

ナノ細孔内部のイオン移動現象は電池技術における電解質膜、海水淡水化技術における逆浸透膜など様々な環境・エネルギー技術において見られる。しかし、既存の研究は必ずしも組成、構造、表面状態などが十分に定義されたナノ細孔を用いておらず、ナノ空間内部の移動現象は十分に評価されているとは言えない。また、分析化学の分野においても、バイオセンサーなどの応用技術に対して同様の研究が行われているが、数ナノメートルの空間におけるイオン移動については、定量的な評価はまだ十分にできていない。このような背景から、規則性ナノ細孔をもつメソポーラスシリカ薄膜を合成し、その内部を流れるイオン流の実験計測、および理論解析を行い、ナノ細孔内部のイオン流の特性評価を行うとともに、移動現象の数理モデルを提案した。

本論文は、「Ion Transport in Ordered Nanoporous Structures (規則性ナノ細孔内部のイオン移動に関する研究)」と題し、全6章から構成されている。

第1章は「序論」であり、研究の背景、ナノスケールの空間に特有のイオン移動現象、および規則性ナノ細孔に関する従来の研究を示した上で、本論文の位置づけ及び目的について述べられている。

第2章は「3次元細孔構造をもつメソポーラスシリカ SBA-16 薄膜内部におけるイオン移動現象」という題目で、メソポーラスシリカ SBA-16 薄膜の合成、イオン移動現象を評価するマイクロチップの製作、イオン移動現象の電気化学計測、イオン移動現象の理論解析について述べられている。メソポーラスシリカ SBA-16 薄膜に塩化カリウム水溶液を満たした系においては、イオン濃度が十分に低く、ユニポーラ溶液（細孔壁の電荷と反対の電荷をもつイオンからなる溶液）で細孔が満たされた時、細孔の両端に直流電場を付与すると非線形の電流電圧曲線が得られた。ここで得られた非線形の電流電圧曲線は、電位差の増加と共に、電流が指数関数的に増加するもので、ナノ細孔内部に存在するエネルギー障壁に起因するものである。また、この電流電圧曲線はイオン濃度が高くなると、線形になることを確認した。また、理論解析において、バルクの物性値を用いた連

続体計算では、この非線形の電流電圧曲線は再現できないことを明らかにし、ナノ細孔内部においては、誘電率の低下、拡散効果の抑制が示唆された。

第3章は「メソポーラスシリカ SBA-16 薄膜内部におけるプロトン移動現象」という題目で、塩化カリウム水溶液の代わりに塩酸で同様のナノ細孔を満たした系について考察した。カリウムイオンとプロトンの違いに起因し、電流電圧曲線の測定において平衡状態に到達するまでの緩和時間が異なること、電流電圧曲線が非線形から線形に遷移するイオン濃度が異なることを明らかにした。可能性のあるメカニズムについて議論した。

第4章は「2次元細孔構造をもつメソポーラスシリカ SBA-15 薄膜の膜厚と細孔配列」という題目で、薄膜合成条件と膜厚・細孔配列の関係を明らかにした。特に、ディップコーティング法における引き上げ速度と薄膜内部の細孔の細孔径、細孔間隔、細孔配列の関係を詳細に調べた。薄膜形成時の流体力学の問題、テンプレート分子の自己組織化や溶媒蒸発などの物質移動問題を検討し、規則性の高いナノ細孔薄膜の合成条件を明らかにした。

第5章は「2次元細孔構造をもつメソポーラスシリカ SBA-15 薄膜内部におけるイオン移動現象」という題目で、第4章で検討した規則性の高い2次元細孔構造をもつメソポーラスシリカを用いて、イオン移動現象の実験計測を行った。得られた電流電圧曲線はすべてのイオン濃度において線形であり、3次元細孔構造をもつメソポーラスシリカにおいて見られたような非線形性は示さなかった。

第6章は「結論」であり、以上の考察から得られた知見をまとめている。

以上述べたように、本論文では2次元、および3次元細孔構造をもつ規則性の高いメソポーラスシリカ薄膜を用いて、そのナノ細孔内部のイオン流の特性評価を行うとともに、移動現象の数理モデルを提案した。ナノ細孔内部の移動現象をマイクロチップのレベルで実験計測したり、理論解析をしたりすることにより、多孔質材料の設計指針を得たり、その知見を環境・エネルギー技術に応用したりできる可能性を示すものであり、その環境学的な意義は大きい。なお、本論文第2章は、遠藤明氏、片岡祥氏、高橋飛鳥氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（環境学）の学位を授与できると認める。

以上1988字