

氏 名 片元 勉

授与した学位 博士

専攻分野の名称 工学

学位授与番号 博甲第4139号

学位授与の日付 平成22年 3月25日

学位授与の要件 自然科学研究科 機能分子化学専攻

(学位規則第5条第1項該当)

学位論文の題目 機能性無機粒子の湿式合成に関する研究

論文審査委員 教授 高田 潤 教授 岸本 昭 准教授 藤井 達生

### 学位論文内容の要旨

本研究では、塗料・電子工業・環境分野で重要な材料である機能性無機粒子の工業的な合成方法を確立するために、各種湿式反応を検討した。酸化鉄は環境負担が小さい材料として、非常に多くの分野で使用されている。本研究では、新規アプリケーション創製用板状酸化鉄の合成とキャラクタリゼーションを目的に、新規水熱合成法及び新規空気酸化法を検討し、粒子サイズ  $0.4\sim 22\ \mu\text{m}$ 、粒子厚み  $0.0145\sim 6\ \mu\text{m}$ 、アスペクト比  $3\sim 86$ (粒子厚みに対する粒子サイズの比)の非常にバリエーションに富んだ板状粒子を工業的に利用可能な方法で合成することができた。しかも得られた板状酸化鉄は、粒子サイズ分布、粒子厚み分布及び配向性が優れたものであり、板状無機粒子の新規用途(フィルム補強材等)を開拓できた。また得られた板状酸化鉄の色調は、明度  $L^*24.2\sim 60.7$ 、彩度  $C^*1.4\sim 31.4$  の非常に幅広い色域をカバーするものであり、酸化鉄の着色顔料としての利用分野を拡大することができた。特に本研究で得られたサンプル(粒子サイズ  $2.5\ \mu\text{m}$ 、粒子厚み  $0.029\ \mu\text{m}$ )は、板状酸化鉄の中で、特異的に明度  $L^*$ と色相  $H^*$ が大きいことを明らかにした。そして得られた板状酸化鉄粒子を水素ガスで還元処理することにより、板状マグネタイト、板状マグヘマイト、板状  $\alpha\text{Fe}$  に変換することができ、粒度分布・色調・磁性に優れた各種強磁性板状粒子を合成することに成功した。

ハイドロタルサイトを代表とする層状複水酸化物(Layered double hydroxide)は、医療・樹脂安定剤・保温材に幅広く使用されている。この分野の研究は  $\text{Mg-Al-CO}_3$  型化合物が中心となっているが、鉄イオン含有層状複水酸化物の研究も1980年以降積極的に行われるようになった。その研究の目的は、金属鉄の腐食の解明及び有害アニオンの吸着特性の評価が中心であり、機能性粒子としての鉄含有層状化合物の研究は非常に少ない。そこで本研究では、機能性鉄イオン含有層状複水酸化物の合成を目的に、炭酸イオン共存下での2価鉄イオンを湿式急速空気酸化する方法で、各種鉄イオン含有層状複水酸化物の合成とキャラクタリゼーションを行った。その結果、3価鉄のみから成る鉄系層状化合物単相の合成に成功した。また炭酸イオン共存下で、2価鉄イオンと異種金属イオンの混合溶液を湿式急速空気酸化することにより、異種金属イオン-鉄イオン含有層状化合物及び含水酸化鉄を合成することに成功した。また得られた層状化合物及び含水酸化鉄のキャラクタリゼーションを行ない、微構造、熱的安定性及び水蒸気吸着特性を明らかにした。特にチタンイオン含有含水酸化鉄は、室温における水蒸気吸着特性は、高水蒸気分圧の領域で含水酸化鉄としては、非常に大きな吸着容量を持っていることを明にした。

アルミノ珪酸塩化合物の一種であるイモゴライトは、有機無機ナノコンポジット材料、デシカント空調用水蒸気吸着剤、各種イオン吸着剤として、期待されている。そのために、これまで合成方法の研究が積極的にされて来たが、未だに工業的に安価に製造する技術は確立されていない。そこで、本研究では、基礎合成反応の検討と生成物のキャラクタリゼーションを行い、イモゴライトの基礎反応条件と生成物の特性を明らかにした。また基礎合成反応の検討結果を基に、異種金属の添加反応を行うことにより、イモゴライト生成領域と機能性イモゴライトとしての特性を明らかにした。そして、ガラス基板へのイモゴライト膜の形成を反応溶液浸漬方法で試みた結果、本方法は緻密なイモゴライト膜をガラス基板上に形成できる優れた方法であることを明らかにした。さらに、金属シリコン及び金属アルミニウム粉末を希薄な王水溶液で湿式加熱する合成方法を考案し、イモゴライトの新規合成法としての可能性を示すことができた。

## 論文審査結果の要旨

本研究は、優れた特性を持つ多彩な機能性酸化物粒子の工業的合成法の確立を目指し、エネルギー面や生産性、コスト面で優位な各種湿式合成反応を世界に先駆けて開発し、得られた酸化物粒子の特徴と特性を明らかにしたものである。

主な結果を要約すると次の通りである。

- (1) 板状酸化鉄：2種の新規湿式合成法を開拓し、多様な板状酸化鉄粒子の合成に成功した。さらに、これらの粒子が優れた特性を有することを明らかにし、利用分野の拡大に展開した。加えて、これらの出発物として良好な特性の各種強磁性板状粒子の合成にも成功した。
- (2) 鉄含有層状化合物：従来報告例のない湿式急速空気酸化法を新たに開発し、3価鉄からのみ構成された機能性鉄含有層状化合物単相の合成に成功した。また、異種金属イオン-鉄イオン含有層状化合物の合成にも成功した。さらに、これらの化合物が優れた特性を有することを明らかにした。
- (3) アルミノ珪酸塩化合物：次世代材料として期待されているアルミノ珪酸塩化合物イモゴライトの基礎反応条件と生成物の特性を明らかにし、工業的に安定して製造できる3種類作製方法を初めて開発した。

同氏の成果は、国内誌へ1編の論文として掲載予定（本年2月）であり、加えて関連特許は合計27件を数える。

以上の如く、本研究の成果は学術的のみならず産業上の貢献も著しく、きわめて価値の高いものと評価できる。よって、本論文は学位（博士）論文として十分に値する。