

学位（博士）論文の要約

《 学位申請者 》 宇部 卓司

《 論文題目 》 透過赤外分光法による水に関わる諸反応のその場観察

《学位(博士)論文の要約》

地球は水の惑星であり、必然的にそこに生起する実に多くの現象に水が関わっており、人類の存続も水の存在なしにあり得ない。水は我々にとって最も身近な物質の一つであるが複雑液体であり、その物性は未解明の部分を残している。さらに化学反応の立場から見るとその多くは水溶液中の反応であり、現代の工業及び科学において水に関わる反応機構を知ることとは応用上重要である。そのため分光法、そしてX線をはじめとする粒子線回折法など様々な手法を工夫して研究が行なわれてきている。本研究は水に対して強い吸収を示す赤外線に注目し、水分子及び水溶液中の物質の分子レベルでの運動を捉えるべく、今まで必ずしも系統的に捉えることができなかった赤外吸収波数範囲に亘り、温度・圧力を制御した透過赤外分光観察システムを新たに構築し、水に関わる諸反応のその場観察に適用したものである。

本論文は4章より構成されており、第1章では、博士論文の研究背景・研究目的について述べている。すなわち水は温度・圧力変化により氷、液体水、水蒸気そして超臨界状態と変化するが、赤外分光を用いた水の物性研究では同一光学系によるこの広い密度・温度・圧力範囲並びに水分子の伸縮から変角振動波数に亘る水及び水中反応のその場観察が技術的に困難であったことを述べ、解決の必要性について概観している。そして連続的に観察すべ

き反応例として工業的水熱反応の応用例について述べている。

第2章では赤外分光システムの基本構成要素について述べ、その場観察装置開発にとって必要な技術的課題とその解決手段について述べている。すなわち、超臨界水に対する耐食性の観点から反応セル本体はハステロイ製とし、水の変角振動までを捉えるための赤外線透過性を有し、且つ耐圧・耐食性を備えた CVD ダイヤモンドを窓材に採用し、加えて、水の強い赤外吸収と溶質成分による吸収を吸光度として定量評価するためには反応セルの行路長は1ミクロン程度が必須で、それを実現するためにニッケル箔スペーサーを用い、高感度その場赤外分光計測システムを実現させた。そして、これを用いて、水蒸気から超臨界水を経て液体水までの吸光度の連続的変化を蒸気圧曲線をよぎらずに測定することに成功している。

第3章では本研究で開発したシステムを用いた金属と水との反応その場観察実施例について述べている。水熱反応は工業的に有用な物質合成手法のひとつであるが、通常閉じた反応炉を用いるため反応過程の直接的観察手段は限定されていた。これに対して本研究では赤外分光学的手法をはじめて適用した。アルミニウムは水熱反応により水酸化アルミニウム (böhmite) となり、透明化して行く。室温からの加熱過程をその場観察し、312K の低温からすでに先駆的反応が進行し、336 K で急激に böhmite が生成され、さらに 363K 以上で böhmite 内への水の含浸が進行することを捉えた。さらに生成した böhmite は真空加熱により脱水し 633K 以上で Al-O-H 結合吸収が消失し γ -alumina となることを捉えることができた。加えて、マグネシウムと低温加圧水との反応による水酸化マグネシウム生成と、その後の真空加熱による酸化マグネシウム形成における反応の進行をその場観察することができた。従来の反応の段階的比較だけでは捉えることが不十分であった水中反応途中の詳細を定量的に捉えることに成功した。

第4章では、本論文のまとめとして総括を示している。

以上、本論文では、水及び水に関わる反応の透過赤外分光その場観察システムを構築し、典型的な水熱反応その場観察に適用し、その詳細過程を捉えることに成功している。本手法は多様な水中反応その場観察に適用可能であり工学的、学術的に意義がある。よって博士（工学）の博士論文として十分に価値があるものと認める。

