

## 学位論文の審査結果の要旨

コロイダルシリカを原料として、また土木建築の資材として利用するには、構造や機能を制御する必要があり、そのためには生成過程の理解が不可欠である。申請論文は、活性シリケート水溶液が重合してシリカゲルを生成する過程で形成される化学種を  $^{29}\text{Si}$  NMR と粘度で追跡し、自作した多変量解析プログラムを用いて 3 種のシリケート化学種（オリゴマー、中間体、マイクロゲル）の構造や分率を求めて生成過程を議論した。

6T の強磁場印加は成長過程の高分子鎖に磁気配向とともに、ヒドロキシ基の反応を促し、重合を促進した。構造異方性の中間体を經由して形成される磁場中生成ゲルのマイクロ孔は生成初期に発達することがわかった。このようなアモルファス無機高分子への静磁場影響を実証した例はないので評価できる。

シリケート溶液への微量のアルミニウムイオン添加によって生じるアルミニウムイオンの配位数の 4 配位から 6 配位への変化と硫酸イオン吸着との関係を、 $^{29}\text{Si}$  NMR スペクトルの多変量解析と  $^{27}\text{Al}$  NMR スペクトル変化とによって議論している。6 配位 Al サイトの多くは粒子間隙の硫酸イオンがアクセスできない細孔中に存在しており、表面に位置する 6 配位 Al サイトのみが硫酸イオンに対する活性サイトとなっていると指摘した。

強磁場による構造異方性のシリケート化学種の生成誘起は磁場によるシリカ機能の制御の可能性を示し、微量のアルミニウムイオンのシリカゲルへの添加による硫酸イオンの吸着制御はコンクリートの変性劣化を抑制する観点から応用的に重要である。以上の成果は、いずれも本論文で初めて示されたものであり、特に NMR データに多変量解析を適用して、コロイド分散系の組成変化やマイクロゲル粒子の構造の経時変化を解析したことは意義深い。より詳細な解析の実現にはさらなる手法の改良が必要であるが、基本的な手法を確立した点で大きな意義があると考えられ、他のコロイド分散系への展開が期待される。

これらの成果は査読付き国際誌に公表されており、申請者は大学院博士課程修了者と同等の学力および英語力を有し、本論文が博士論文に値するものと判断した。

### 公表主要論文名

- Shigeo Sasahara, Keiichiro Kaida, Sumio Ozeki, “Magnetic field effects on silica gel evolution from aqueous silicate solutions”, *Chemistry Letters*, **2016**, 45 (8), 895-897.
- Shigeo Sasahara, Sumio Ozeki, “Effects of  $\text{Al}^{3+}$  ions on formation of silica framework and surface active sites for  $\text{SO}_4^{2-}$  ions”, *Langmuir*, **2016**, 32 (28), 7079-7085.