

審査の結果の要旨

氏名 瀬尾 静

多孔性材料は、高比表面積、大細孔容量という特徴を活かした、吸着・イオン交換・触媒材料としての利用の歴史は長く、現代においても工業材料として幅広い分野に応用されている。代表的な例は無機物であるゼオライトや活性炭であるが、近年有機物からなるポーラスポリマー、無機有機ハイブリッド材料からなる多孔性金属錯体など、新たな多孔性材料の合成報告も多数ある。細孔のサイズでは、ゼオライトや活性炭に含まれる細孔径が 2 nm 以下のマイクロ孔の利用が一般的であるが、メソ孔と呼ばれる細孔径が 2–50 nm の細孔は、生体分子などの大きな分子が取り込めるため、新たな用途への展開が期待される。現在報告されている主なメソ孔材料は、合成時に界面活性剤のミセルを細孔の鋳型として得られるメソポーラスシリカであり、他の材料はさらにこのシリカ材料を鋳型として作られていることから、さらなる合成手法の開発が望まれていた。

本博士論文は「メソ細孔構造を制御した無機有機ハイブリッド材料の合成」と題し、界面活性剤のミセル等の鋳型を必要とする従来の合成法とは異なる、ナノビルディングブロックを用いる手法による新たな多孔性材料ならびにメソポーラスシリカ表面のシラノール基を利用した修飾法による新たな性質を有するコンポジット材料の合成を行った。

第 1 章では、序章として研究背景について述べている。細孔材料の種類や合成法およびその重要な分析手法であるガス吸着についての既往の研究を紹介し、本研究の位置づけが示されている。

第 2 章では、環状シロキサン化合物をナノビルディングブロックとして用いた Friedel-Crafts 反応によるポリマー化で、マイクロ孔とメソ孔の両方を有する無機有機ハイブリッドポーラスポリマーの合成が可能であることを報告している。環状シロキサン化合物の場合には各シリコン原子に 2 種類の置換基を導入することが可能であり、その組み合わせによって異なるメソ孔構造が得られることが示されている。従来の界面活性剤のミセルを鋳型として合成される材料では、メソ孔の構造やサイズは界面活性剤の濃度や反応温度によって決まるものであ

ったが、種々の解析を行った結果、ビルディングブロックを用いる合成法では、導入する置換基の種類がメソ孔構造の作り分けに寄与していることが示されている。

第 3 章では、環状シロキサン化合物をナノビルディングブロックとして合成される無機有機ハイブリッドポリマーから、そのメソ孔構造を保持した有機ポーラスポリマーが得られることを報告している。芳香族化合物のモノマーから作られる有機ポーラスポリマーではメソ孔を有する合成例の報告は少ない。環状シロキサン化合物の存在が、有機物で構成されるポリマーの形成過程において、メソサイズの細孔を作り出すことに寄与し、このハイブリッドポリマーを中間材料として利用する合成手法が、有機メソポーラスポリマーの新規な手法になる可能性が示されている。

第 4 章では、均一な細孔径と規則的な細孔配列を有するメソポーラスシリカと炭素のコンポジット材料の合成における炭素源の導入方法として、シリカ表面のシラノール基と炭素源のアルコールとの結合形成による、メソスケールでのハイブリッド化を利用する手法の開発を報告している。炭素源を含浸によって導入する従来の合成法に比べ、より少ない炭素量で均一な炭化層をメソポーラスシリカの細孔内に形成することができ、規則的な細孔構造で疎水的な表面のメソ孔を有するコンポジットが得られたことが示されている。

第 5 章では本研究で得られた結果の総括として、無機有機ハイブリッド材料からなるメソ孔材料の合成についてまとめ、得られた材料の応用として考えられる例、および今後の展望について述べられている。

以上、本博士論文ではシロキサン化合物を含む無機有機ハイブリッド材料からなるメソ孔材料の新たな合成手法を示している。得られた成果はポーラス材料の合成法の開発に重要な指針を与え、工学的に高い価値を有し、化学システム工学および材料化学の発展に寄与するところが多い。

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。