

審査の結果の要旨

氏名 李志強 (Li Zhiqiang)

金属有機構造体 (MOF) は、配位結合を持つ多官能性有機リンカーによってリンクされた遷移金属イオンで構成される新しいタイプの多孔性結晶材料で、表面積が大きく、細孔のサイズ調整が可能であるため、近年注目を集めている。MOF はその優れた特性により、ガスの吸着、分離、センサー、触媒、抗菌剤などのさまざまな用途へ応用が広く検討されている。MOF は通常、粉末の形で存在するため、工業用材料として使用するためには、これらの結晶性粉末を特定の形状に成形する必要がある。地球の植物資源に由来するセルロース系材料は、比強度が高く、コストが低く、リサイクル性と生分解性があり、繊維表面に多くの官能基を持っているという特徴がある。この研究は、MOF をセルロース材料に堆積させるための、環境に優しいかつ最適な調製法を検討し、それらの物性等を検討したものであり、様々な応用も可能と考えられる。本研究の手法により調製された MOF 機能化セルロース系材料は、より経済的かつより環境にやさしいという利点を備え、高付加価値材料として今後の発展が期待される。

第 1 章では MOFs に関する広範な研究を紹介し、本論文の位置付けを行っている。

第 2 章では図 1 に示すように、銅との配位結合のリンカーソースとしてトリメシン塩を使用し、高収量パルプ繊維への Cu-BTC 金属有機フレームワークの複合材料を水溶液で調製した。

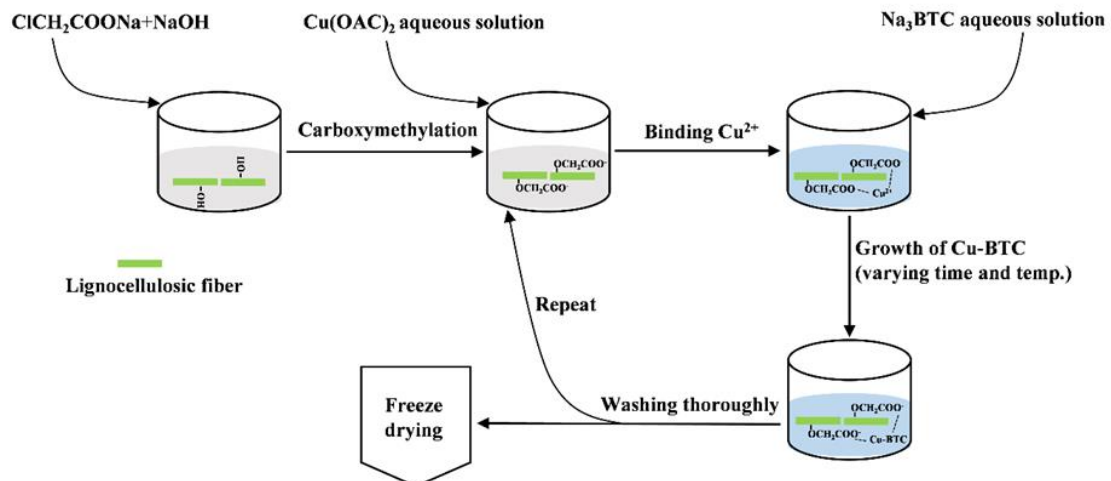


図 1 セルロース繊維に Cu-BTC を堆積する方法の模式図

リグノセルロース繊維に反応サイトを導入するため、カルボキシメチル化を行い、次に繊維上に Cu-BTC 結晶をレイヤーバイレイヤー法で調製温度と時間を変数として堆積させた。調製された

複合材料は、ATR FT-IR、XRD、SEM、および比表面積アナライザーで分析した。

XRD パターンでは、成長層を増やすに従い、Cu-BTC の特徴的なピークが増加した。一方 CHF の強度はだんだん少なくなった。これは、ファイバー表面への Cu-BTC の堆積が多くなり、Cu-BTC 膜が厚くなるためと考えられる。堆積率は、成長温度の上昇と成長時間の増加に伴ってわずかに増加したが、成長層が増えると著しく増加した。合成された Cu-BTC @ CHF の比表面積は、コントロールの繊維と比較して大幅に向上し、特定のガス吸着能力を有する多孔質材料として使用できる可能性があると考えられる。

第 3 章では、図 2 のように 4 つの異なる手順 (ワンポット、2 ステップ、LbL-org、LbL-wtr-org) で、市販のろ紙に Cu-BTC 金属有機フレームワークを堆積させ、その主要な特性と特性を比較検討した。調製されたろ紙は、SEM、EDS、ATR FT-IR、および XRD によって分析した。また堆積率とガス吸着能力も評価した。堆積率は、ワンポット法では 1.31%であったが、2 ステップ法では 4.23%に増加した。さらに LbL-org で 31.49%、LbL-wtr-org で 39.38%とレイヤーの回数を増やすに従い、著しい堆積率の向上が達成された。FT-IR から同様にカルボキシメチル化ろ紙に堆積した Cu-BTC 結晶が 2 ステップ法により増加し、LbL-wtr-org 法ではレイヤーの回数が増やすことによって著しく堆積されたことが分かった。また LbL-wtr-org 法で調製されたろ紙は、この中で最大のガス吸着能力を示した。この方法は、有機溶媒の使用量を減らし、環境に優しいセルロースベースの材料に堆積する MOF の調製に最適な手法となると言える。

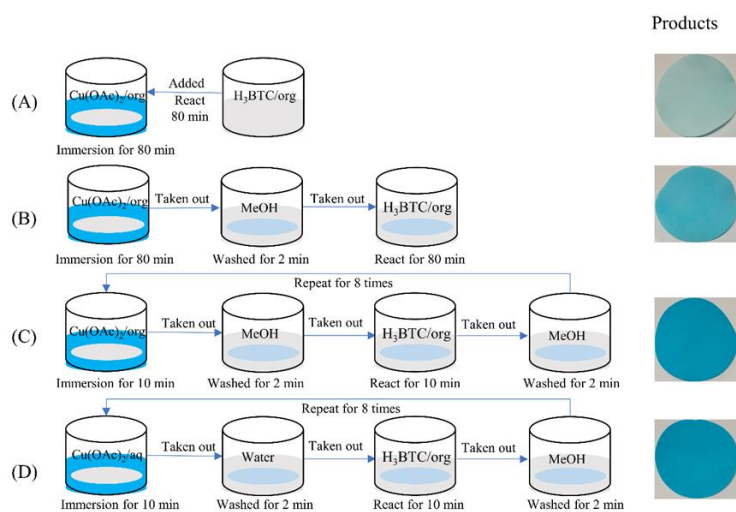


図 2 ろ紙に Cu-BTC を堆積させる 4 つの手法

第 4 章では、この論文で得られた結果と、今後の発展性について述べている。

これらの研究成果は、学術上応用上寄与するところが少なくない。よって、審査委員一同は本論文が博士（農学）の学位論文として価値あるものと認めた。