

論文審査の結果の要旨

氏名 高橋 顕

本論文は全五章から構成されており、様々なプルシアンブルー類似体を構造設計指針に基づき合成し、アンモニア分子とセシウムイオンの吸着現象について論じている。

第一章では、多孔性配位高分子やプルシアンブルー類似体を用いた吸着現象に関わる研究背景が述べられ、本研究の目的および概要についてまとめられている。

第二章では、無水状態のプルシアンブルー類似体へのアンモニア吸着について報告されている。プルシアンブルー類似体の空隙サイトと配位サイトの2つの分子吸着サイトに着目し、分子吸着サイト数の異なるプルシアンブルー類似体を合成した。25℃におけるアンモニア吸着等温線を測定し、プルシアンブルー類似体 $\text{Co}[\text{Co}(\text{CN})_6]_{0.60}$ が既存のアンモニア吸着材の中で最も高い吸着容量を示すことを明らかにしている。また、アンモニア吸着サイトは、水の吸着サイトである空隙サイトと配位サイトの数と一致し、それら2つのサイトがアンモニア吸着サイトとして働くことを明らかにしている。

第三章では、水和状態のプルシアンブルー類似体によるアンモニア吸着について報告している。赤外吸収スペクトル測定の結果より、水和状態のプルシアンブルー類似体に吸着されたアンモニア分子は、一旦配位サイトへと吸着された後に、水と水からプロトンを受け取りアンモニウムイオンとしてプルシアンブルー類似体内に吸着されることを明らかにしている。また、水和状態のプルシアンブルー類似体に吸着されたアンモニアは希酸により脱離可能であり、繰り返しアンモニア吸着材として使用可能である。これらの結果は水和状態のプルシアンブルー類似体がアンモニア吸着除去に非常に有用であることを示している。

第四章では、プルシアンブルー類似体を用いたセシウム吸着材への利用について、水溶液中での安定性と、ナノ粒子化による吸着速度向上について報告している。水溶液中での安定性については、 $\text{K}_2\text{Zn}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]_2$ がプルシアンブルーよりも高い pH でも分解せずにセシウムイオンを吸着可能であることを、放射性セシウムを含む焼却灰洗浄液を用いて実証している。また、マイクロミキサーを用いて $\text{K}_2\text{Cu}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]_2$ のナノ粒子を合成し、粒子サイズが小さい場合にはセシウムイオン吸着速度が向上することを明らかにしている。これらの結果はプルシアンブルー類似体が放射性セシウム除染において有用であることを示している。

第五章は本研究のまとめである。プルシアンブルー類似体をアンモニア吸着およびセシウムイオン吸着材として用いる際の有用性を述べると共に、プルシアンブルー類似体の構造設計の多様性により、本研究のような吸着材としての機能向上が実現可能であることを

述べている。

本研究の成果は、プルシアンブルー類似体の組成、分子吸着サイト、そして粒径の制御による構造設計により分子吸着能、構造安定性、そして吸着速度の向上を実現したことである。また、プルシアンブルー類似体におけるアンモニア吸着は本研究が初めての報告であり、今後更なる発展が期待される重要な結果である。本研究ではアンモニア分子とセシウムイオンを吸着対象として実験を行っているが、プルシアンブルー類似体を用いた他の分子や陽イオンの吸着にも展開可能な重要な結果であると言える。

なお、本論文の第二章と第三章は、田中寿氏、Durga Parajuli 氏、中村徹氏、南公隆氏、杉山泰氏、伯田幸也氏、川本徹氏、大越慎一氏との共同研究であり、第四章は北島明子氏、Durga Parajuli 氏、伯田幸也氏、田中寿氏、川本徹氏、南公隆氏、南信次氏、陶究氏、李慶武氏、栗原正人氏、大越慎一氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、分析および検証を行ったもので論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。