

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)	氏名	津野地 直
学位授与の要件	学位規則第4条第1・2項該当		
論文題目 Novel layered silicates HUSs: potential application for functionalized material (新規層状ケイ酸塩 HUSs:機能材料としての応用展望)			
論文審査担当者			
主 査	教 授	佐野 庸治	
審査委員	教 授	塩野 毅	
審査委員	教 授	犬丸 啓	
審査委員	教 授	早川 慎二郎	
審査委員	准教授	定金 正洋	
〔論文審査の要旨〕			
<p>層状ケイ酸塩は、SiO_4四面体の頂点共有によって構築されたナノメートルオーダーの厚さを有するアニオン性シリケートシートと層間の交換性カチオンから成る結晶性の層状化合物である。層間には広大な空間(表面積約 $1000 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$)を有し、層表面に結晶構造に伴って規則的に配列したSiOH基に対して、様々なポスト処理(イオン交換、グラフティング、ピラー化)を行うことが可能であるため、局所的または巨視的な構造を自在に設計し、吸着材や触媒などの用途に代表される機能材料としての応用が盛んに行われている。層状ケイ酸塩に対する多種多様な修飾、設計法を確立することはより多彩な応用に向けた発展手法の一つであるが、一方で、層状ケイ酸塩の魅力的な基本物性((1)広大な層表面、(2)規則的な層間の空間および(3)特異的なシリケート骨格構造)は元の層状ケイ酸塩シリケート骨格構造および結晶構造から強く影響を受けるため、新しい層状ケイ酸塩は新奇な材料設計の母体として高い可能性を秘めているといえる。</p> <p>そこで本論文では、層状ケイ酸塩を母体とした機能材料の応用用途の更なる開拓のため、新規層状ケイ酸塩 Hiroshima University Silicate (HUS) の合成および機能材料への応用について検討した。第1章では、既存の層状ケイ酸塩に関する研究を概観するとともに層状ケイ酸塩の材料設計の例を挙げ本研究の目的を明らかにした。第2、3章では、新規層状ケイ酸塩の合成を試みた。ゲル中の水量を著しく少なくした条件(低$\text{H}_2\text{O}/\text{SiO}_2$比)で合成を行うことで、コリン水酸化物およびベンジルトリメチルアンモニウム水酸化物を構造規定剤として用いた合成系から、新規層状ケイ酸塩HUS-2およびHUS-7の合成に成功した。第4章では、HUS-2の分子認識的な吸着特性を明らかにした。HUS-2はギ酸、酢酸およびプロピオン酸を含む水溶液中からプロピオン酸のみを吸着した。このような吸着挙動は異なるシリケート骨格構造を持つ層状ケイ酸塩では観察されず、HUS-2の新規な骨格構造が重要な役割を担っていることが示唆された。第5章では層状ケイ酸塩HUS-5の層間の広大な空間を利用し、新規ナノポーラスシリカHUS-6の合成を行った。HUS-5に対してイオン交換、酸処理、焼成など多段階的な手法を行うことで合成されたHUS-6は約$1000 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$の高比表面積と報告例の極めて少ない細孔領域である$1.6 \text{ nm}$の平均細孔径を示し、これらを有効利用した吸着剤および触媒として期待できる。また、第6章では、HUS-2表面へチタニウムアセチルアセトナート錯体の固体化を試み、疑似太陽光を用いたシクロヘキサンの部分酸化反応に対して、高活性、高選択性を示すチタニウムシリケート触媒を設計した。これは層状ケイ酸塩層表面に金属錯体を固定化した初めての報告であり、錯体およびシリケートシートの種類を検討することでさらに複雑な表面設計が期待される。第7章では、新規マイクロ多孔体HUS-10をHUS-2の層間シリル化および焼成を介して設計した。HUS-10はその層間にエタン以下のサイズの分子を吸着可能な分子ふるい作用を有し、さらに、CO_2およびCH_4の吸着を行ったところ、同程度の細孔径を持つゼオライトと比較して高いCO_2/CH_4吸着比を示し、CO_2選択的除去としての利用が期待された。第8章では、各章で得られた結論を総括した。</p> <p>以上より、多様な合成経路によって新規層状ケイ酸塩群 HUSs の合成に成功し、様々な機能材料としての応用の可能性を明らかにした。本研究から、層状ケイ酸塩の新規な構造を効率的かつ最大限に利用できれば、その機能化が新たな材料設計手法として非常に有用であることが示された。</p> <p>これらの成果は、新規層状ケイ酸塩を経由した新たな材料設計の可能性が示しており、高く評価できるものである。よって、本論文は博士(工学)の学位を授与するに値するものと認める。</p>			

備考：審査の要旨は、1,500字以内とする。