

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名

五十嵐 直子

本論文「Studies on organically functionalized mesoporous molecular sieves (和訳有機官能基化したメソポーラスモレキュラシーブに関する研究)」は、メソポーラスモレキュラシーブを様々な方法で合成、有機官能基化し、得られた物質のキャラクタリゼーションを通じ、メソポーラスモレキュラシーブの表面疎水性、構造安定性、及び触媒活性に影響を与える因子について検討し、それらの物性に対する有機官能基化の影響について論じている。

メソポーラスモレキュラシーブは、ゼオライトが持ち得ない20~100Åの均一なメソ細孔を持っていることから、比較的大きな分子に対する吸着剤、触媒、あるいは分離膜としての利用が期待されている。しかしその一方で、この物質は構造安定性が低く、触媒活性もゼオライトに比較して高くないことがわかっており、工業的に利用されるまでには至っていない。本論文では、これらの物性の向上、及びメソポーラスモレキュラシーブの新規応用分野の開拓を目的とし、様々な手法を用いてメソポーラスモレキュラシーブを有機官能基化し、これらの物性の評価を行っている。このように有機官能基化による構造安定性、触媒活性の向上の研究は新規なものであり、非常に意義深いものと考えられる。

第1章では、緒言として、メソポーラスモレキュラシーブについてその歴史的背景とともに、その特徴的な構造や物性、及び有機官能基化の手法について詳細に述べている。

第2章では、様々な出発物質から異なる手法によりメソポーラスモレキュラシーブを合成し、様々な角度からそのキャラクタリゼーションを行っている。その結果からメソポーラスモレキュラシーブの構造安定性に影響を与える因子を明らかにし、構造安定性の高い物質を得るための合成条件を求めることに成功している。合成条件と構造安定性の関係を明らかにしただけでなく、安定で構造規則性の高いメソポーラスモレキュラシーブを合成する条件を得る基礎データとしても有効である。

第3章では、メソポーラスモレキュラシーブを直接法により有機官能基化することにより、高い疎水性を賦与し、水、あるいは力に対する構造安定性を向上させることに成功している。二段階の処理が必要で比較的複雑なポストシンセシス法による有機官能基化で構造安定性が向上することがこれまでに報告されているが、比較的簡単に有機官能基化が行える直接法により得られた物質に対する詳細な研究は、工業的な利用を視野に入れた場合意義が深い。また、固体NMRを用いることによりメソポーラスモレキュラシーブの表面シラノール基量

を定量的に評価し、構造安定性が表面シラノール基量と密接な関係があることを見いだしている。

第4章では、Ti 含有メソポーラスモレキュラシーブを直接法、あるいはポストシンセシス法により有機官能基化し、その表面疎水性の向上を通じ、過酸化水素水を酸化剤に用いた酸化反応に対する触媒活性を向上させることに成功している。Ti 含有メソポーラスモレキュラシーブは、TS-1 などの Ti 含有ゼオライトよりも触媒活性が低いことが知られているが、このような有機官能基化により、オレフィンや不飽和アルコールの過酸化水素酸化に対し、高い活性を示す触媒の開発に成功している。またマイクロ孔しか持たないゼオライトでは触媒活性を示さない大きな分子径を持つ反応物に対しても高い触媒活性を示すことも見いだしている。有機官能基化については、モレキュラシーブ表面を二次的に有機修飾するポストシンセシス法と、有機シランを Si 源に用いてモレキュラシーブを合成する直接的手法が用いられており、それぞれの手法の特徴についても比較、言及されている。

以上のように本論文は、メソポーラスモレキュラシーブの有機官能基化を様々な方法で行い、適切なキャラクタリゼーション方法を用いて、得られた物質の特徴的な性状と触媒としての応用の可能性を明らかにしている。またそれらの物質について今後考えられる応用や、用いた手法の今後の展開についても的確な言及がなされている。

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。