

論文の内容の要旨

論文題目 Preparation of Surface Modified Mesoporous Silicas and Their
 Paramagnetic Properties
 (表面修飾メソポーラスシリカの作製とその常磁気特性)

氏名 千野直孝

多孔質シリカは吸着剤、触媒の担体として汎用されており、他の金属酸化物では例がない程、多種多様の細孔径、細孔構造、形態を制御することができる。細孔径のサイズはミクロ孔からマクロ孔まで、その分布までも制御可能である。また、粉末から薄膜まで形態を制御することができる。吸着剤及び触媒の担体としての利用に目を向けると、シリカ表面特性の制御が重要な課題として挙げられる。これまでに有機官能基修飾・金属イオンの担持・固定化といった手法により表面を機能化・制御することで、触媒・吸着剤への応用を可能にしてきた。これらの特性を理解・制御するうえでシリカの表面・界面科学は重要な役割を果たしてきたといえる。

本博士論文では、「新しい異種分子・表面の組み合わせによる表面処理法の検討」、「光・磁気特性の視点からシリカ表面に展開される界面現象の理解」によるシリカの表面・界面科学の発展に貢献することを目的としている。まず、シリカ表面と異種分子の様々な相互作用を利用した表面処理手法を検討している。次に「シリカ表面と異種分子の組み合わせにより発生する光・磁気物性から解析する手法」と「解析容易な異種分子の光・磁気物性をプローブとする手法」を用いて、表面処理による状態変化を考察している。最後に作製された表面状態の特異性を主に電子スピンサイエンスの技術で汎用性のある電子スピン共鳴法 (ESR) を用いて検討している。

Chapter 2 では LiCl を吸着させたシリカ表面の熱処理による光・磁気物性の変化を観察することで、この系に特有の常磁性種が生成することを明らかにしている。また、その生成メカニズム及びシリカ表面の役割を明らかにした。Chapter 3 では高温アンモニア処理によるシリカ表面の窒化反応について論じている。表面基の種類・分布、及び欠陥種の同定とその役割を推測することで、従来と比較し詳細な反応経路を検討している。Chapter 4 では窒素を導入したシリカ表面への銅イオンの吸着挙動について論じている。銅イオンのもつ光・磁気物性をプローブとすることで、窒素原子の表面密度による銅イオンの吸着状態の変化、表面窒素原子の配位子強度を考察している。さらに 'Interfacial Coordination Chemistry' の観点からシリカ表面への銅アンミン錯体の吸着挙動との違いを議論している。Chapter 5 では主に電子スピン共鳴を用いて、本論で作製した表面修飾メソポーラスシリカの常磁気特性を調べている。常磁気特性の評価が表面状態に対するより深い理解が可能になること、及び新たな機能の発見に繋がることを明らかにしている。