

審査の結果の要旨

氏名 福岡 歩

メソ領域 (2~50 nm) の規則細孔をもつ多孔質材料であるメソポーラスシリカは、触媒担体や吸着剤、ホスト材料など幅広い応用が期待されている。メソポーラスシリカは、適切な合成条件を選択することで、シリンダー状細孔からなる二次元ヘキサゴナル構造やケージ状細孔からなるキュービック構造、三次元ヘキサゴナル構造といった多様な構造が得られることが報告されている。メソポーラスシリカを実用材料として展開するために、メソ構造やメソ細孔の配向を精密かつ自在に制御することが重要な課題である。合成条件の最適化や添加物の使用などによる数多くのメソ構造制御の報告があるが、体系的な制御を達成した例は少ない。メソ細孔の配向制御に関しては、異方性が発現する可能性から薄膜試料において多く試みられているが、薄膜内での部分的な配向制御にとどまっており、マクロスケールでの完全な制御は達成されていない。

本博士論文では、メソ構造の鑄型となる界面活性剤と有機成分の相互作用に着目し、メソポーラスシリカの精密な構造・配向制御法を新たに確立することを目的としている。

Chapter 1 では、メソポーラスシリカの特徴や形成メカニズム、形態制御等、本研究の背景を述べている。その中で、メソ構造およびメソ細孔の配向を精密に制御するための問題点を示し、本研究の意義について述べている。

Chapter 2 では、有機添加物 1,3,5-トリアルキルベンゼンが SBA-3 型メソポーラスシリカの構造に与える影響について詳細に検討している。1,3,5-トリイソプロピルベンゼンを用いた場合に、添加量の変化によって二次元ヘキサゴナル構造、三次元キュービック ($Pm3n$ 、 $Fm3m$) 構造の精密な制御を達成している。また、添加する 1,3,5-トリアルキルベンゼンと得られるメソ構造の相関について、充填パラメータ値の変化に着目して考察している。

Chapter 3 では、Chapter 2 で得られた結果を骨格内にフェニレン基を有するメソポーラス有機シリカの系に展開している。1,3,5-トリイソプロピルベンゼンを添加した塩基性条件下での合成において、構造規則性の低下は見られたものの、骨格の結晶構造を保持したまま細孔径および細孔容積の大幅な拡大に成功している。また、ベンジルアルコールを添加した酸性条件下での合成において、三

次元キュービック ($Pm3n$) 構造から二次元ヘキサゴナル構造へ変化させることに成功している。さらに有機添加物がメソ構造に与える影響について、Chapter 2 の系と比較を交えながら検討を行っている。

Chapter 4 では、異方性ポリマー基板上におけるケージ状細孔の配向制御について検討している。従来、この異方性ポリマー基板を用いてチューブ状細孔の配向を一方向に揃えることが可能であったが、界面活性剤の充填パラメータを変化させることで、ケージ状細孔のマクロスケールでの配向制御を達成している。TEM 観察、二次元 XRD 分析および面内 XRD 分析により、三次元ヘキサゴナル構造の配向が広範囲にわたって制御され、規則正しくケージ状の細孔が配列した単結晶のような薄膜であることを明らかにしている。また、合成初期段階の薄膜の構造評価をもとに、配向性三次元構造の形成メカニズムが提案されている。

Chapter 5 では、異方性ポリマー基板上で細孔の配向制御が達成されたメソポーラスシリカ薄膜の応用として、シリンダー状細孔が一軸配向した薄膜の細孔内におけるゲスト種の配向制御について検討している。ゲスト種としてはシアニン色素を用いている。可視吸収偏光スペクトル測定により、色素分子が細孔方向に平行に配向していることを明らかにし、この吸収スペクトルの異方性が細孔構造の異方性に起因することも確認している。

Chapter 6 では、本研究で得られた結果を総括している。

以上、本論文ではメソポーラスシリカの新規構造・配向制御法を提案している。従来にない精密な構造・配向制御を実現し、吸着材料や分離膜、機能性分子のホスト材料としてのメソポーラス材料の新たな可能性を示している。これらの成果は、化学システム工学ならびに材料化学の発展に寄与するところが大きい。

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。