

論文審査の結果の要旨

氏名 山本 佑樹

本論文は6章からなり、第1章は研究の概論と背景、第2章はテトラキステルピリジン配位子で架橋したパラジウムナノ粒子の合成、第3章は錯形成反応を利用したパラジウムナノ粒子架橋体の合成と水素吸蔵特性、第4章は四面体構造を有するパラジウムナノ粒子の合成と架橋構造体の構築、第5章はパラジウム-バナジウム合金ナノ粒子の合成とその水素吸蔵特性、第6章は研究成果の総括を述べている。以下に各章の概要を示す。

第1章では、本研究の概論と背景について述べた。内容としては、金属ナノ粒子、水素吸蔵金属及び metal-organic framework について述べた。

第2章では、2種類のテトラキステルピリジン配位子を用いてパラジウムナノ粒子の架橋化を行い、ナノ粒子のネットワーク構造の構築に関する研究を述べた。電子顕微鏡による観察から、パラジウムナノ粒子はダイヤモンド構造をとって架橋していることが確認された。窒素吸着測定により、架橋構造は $0.03 \text{ cm}^3/\text{g}$ の細孔量を有していた。水素吸蔵測定では、ナノ粒子集合体に約 0.3 mass\% の水素が吸蔵されたものの、ほとんどがナノ粒子への吸蔵であり、細孔への水素吸蔵は確認されなかった。これは、作製した構造体内の細孔量が不十分であり、最大でも 0.03 mass\% の水素吸蔵量に止まるのが原因であった。

第3章では、テルピリジン-鉄イオン結合を用いてパラジウムナノ粒子の架橋を行い、ナノ粒子のネットワーク構造の構築に関する研究を述べた。テルピリジン配位子は第二章のテトラキステルピリジン配位子を用い、4つのテルピリジン基のうち1つはナノ粒子に、残りは鉄イオンを介してテルピリジン基同士を結合させた。窒素吸着測定により、ナノ粒子集合体は $0.05 \text{ cm}^3/\text{g}$ の細孔を有しており、第二章で作製した架橋体より大きな細孔を構築することに成功した。水素吸蔵測定により、ナノ粒子集合体に 0.25 mass\% の水素が吸蔵されたものの、細孔による水素吸蔵量は最大で 0.05 mass\% であり、依然として細孔への水素吸着量は僅かであった。

第4章では、四面体構造を有するパラジウムナノ粒子の合成とその架橋体の構築について述べた。ポリオール法を用いることで、四面体構造を有するパラジウムナノ粒子の合成法を見出した。合成条件の最適化を行なうことで、四面体構造をメイン構造として作り出すことに成功した。その架橋体は、 $0.1 \text{ cm}^3/\text{g}$ の細孔を有しており、今回作製したパラジウムナノ粒子集合体の中で最大の細孔量を有する構造体を構築することに成功した。

第5章では、パラジウム-バナジウム合金ナノ粒子の合成について述べた。合成はポリオール法を用いて行い、 10% のバナジウムを含む合金ナノ粒子の合成に成功した。水素吸蔵測定により、合金ナノ粒子は 0.47 mass\% と今回報告したナノ粒子の中で一番大きな値を示した。

第6章では、今回の論文の総括を記した。

以上、本論文では、水素吸蔵材料への応用を目指したパラジウムナノ粒子の集合体の構築について述べた。本研究を通してパラジウムナノ粒子集合体によって構築された細孔の大きさを制御することに成功し、パラジウムナノ粒子の合成条件を調整することで、四面体

型の形状やバナジウムとの合金を作製することに成功している。本論文の研究を基礎とし、金属ナノ粒子の種類や架橋構造の設計を改良していくことで、実用に向けた水素吸蔵材料への応用が開けると期待される。なお、本論文は藁田 愛、宮地麻里子、山野井慶徳、大島伸司、小堀良浩、西原 寛とのとの共同研究であり、一部はすでに学術雑誌として出版されたものであるが、論文提出者が主体となって実験、解析を行ったもので、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。