

氏 名 田中 俊行

授与した学位 博士

専攻分野の名称 環境学

学位授与番号 博甲第4791号

学位授与の日付 平成25年 3月25日

学位授与の要件 環境学研究科 資源循環学専攻

(学位規則第5条第1項該当)

学位論文の題目 層状複水酸化物を用いた新規な無機-有機ナノハイブリッドの開発に関する研究

論文審査委員 教授 三宅通博 教授 難波徳郎 准教授 亀島欣一 准教授 紅野安彦

## 学位論文内容の要旨

様々な機能性材料の探索が盛んに行われているが、組み合わせにより種々の物性を設計できる無機-有機ナノハイブリッドは多くの注目を集めている。無機-有機ナノハイブリッドの合成法の一つに、層状無機化合物のナノ層間へ機能性有機化合物を集積させる方法がある。

層状複水酸化物 (Layered double hydroxide: LDH) は陰イオン交換能を有する層状粘土鉱物であり、その層間は二次元方向に広がるナノ空間である。LDH 層間の陰イオンは容易に交換可能であり、ここに様々な陰イオン性の有機物質をゲストとして挿入・集積することで、これまでにない有機分子の組織化と相互作用を導き、特異な機能をもった無機-有機ナノハイブリッドを創製することができる。LDH をホストとして用いた無機-有機ナノハイブリッドはドラッグデリバリーシステム、選択的吸着剤、光機能材料、樹脂添加剤等への応用が期待される。しかしながら、それらのような新規な無機-有機ナノハイブリッドを調製するためには、ナノ層間に挿入する有機物質の特性と所望する機能に合わせた最適な合成プロセスを選択する必要がある。

本論文では、複合化による機能発現の可能性を最大限に引き出すため、合成プロセスの最適化に着目した。様々な構造をもった陰イオン性有機分子を用い、種々の溶媒と反応条件の下で無機-有機ナノハイブリッドを合成し、その取込量や導入状態を分析した。また、無機-有機ナノハイブリッドの応用を目指し、ガラス基板のような基材への固定化手法を検討した。さらに、無機-有機ナノハイブリッドに対する、分光学的な手法を用いた新規な解析法を開発し、その妥当性を検証した。

## 論文審査結果の要旨

層状複水酸化物 (Layered double hydroxide: LDH) は陰イオン交換能を有する層状粘土鉱物であり、その層間は二次元方向に広がるナノ空間である。LDH層間の陰イオンを外部の様々な陰イオン性の有機物質と交換し、ゲストとして挿入・集積することで、特異な機能をもった無機-有機ナノハイブリッドを創製することができる。本論文は、様々な構造の有機陰イオンを用い、種々の溶媒と反応条件の下での新規無機-有機ナノハイブリッドの合成と生成物の評価を論じ、以下のような成果を得ている。

- ・分岐構造をもつ樹状分子とのイオン交換法による複合化を検討し、反応を行う際の水溶液のpHに応じてその取込状態および取込量が変化することを見だし、複合材料が新たなpH応答材料となる可能性を見いだしている。さらにハイブリッドの基材への固定化を検討し、薄膜の光機能の調整に関する新規な材料設計の指針を示している。
- ・カーブフィッティング法による赤外吸収スペクトルのピーク分離は、無機-有機ハイブリッドの層間イオンの定量に極めて有効であることを示し、定量法を提案している。
- ・カルボン酸の非水溶液を用いることで、従来合成することが困難であった短鎖のカルボン酸イオンを層間に包接したハイブリッドが簡便に合成できることを示している。

以上の様に、本論文は LDH を活用した新規無機-有機ナノハイブリッドを開発するために指針となる有用な知見を述べている。従って、論文内容、論文発表会、参考論文を総合的に審査した結果、本論文は博士（環境学）の学位に値するものと認められる。