



Title	層状無機化合物の層間修飾による機能性材料の創成とその応用に関する研究
Author(s)	金野, 元紀
Citation	大阪大学, 2010, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/58387">https://hdl.handle.net/11094/58387</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	かねのもと 紀
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 24121 号
学位授与年月日	平成22年6月15日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科知能・機能創成工学専攻
学位論文名	層状無機化合物の層間修飾による機能性材料の創成とその応用に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 菅沼 克昭 (副査) 教授 安蘇 芳雄 教授 安田 秀幸 教授 浅田 稔 教授 中谷 彰宏 教授 平田 勝弘 教授 南埜 宜俊

### 論文内容の要旨

本論文は、層状無機化合物の層間修飾による機能性材料の創成とその応用を目的として行った研究結果をまとめたもので、全四章で構成されている。

第一章では、本研究の背景、目的および本論文の構成を記した。

第二章第一節では、第二章で取り扱う研究の背景、目的及び第二章の構成を記した。

第二章第二節では、まず陰イオン交換性層状粘土鉱物であるハイドロタルサイト、及びアミノ酸と反応して得られる層間化合物に関する背景をまとめた。その後、焼結復元法によるハイドロタルサイトと酸性アミノ酸との層間化合物の合成、及び生成物の組成、構造を検討し、さらにアセトアルデヒドとの気相反応を検討した。結果、層間距離の増大と共にアミノ酸の取り込みが生じ、層間化合物が得られた。得られた層間化合物に気相中アルデヒドを作用させると、層間中の1級アミンと反応し、アルデヒドを化学吸収できることを見出した。続いて、層間化合物の再現性と加熱処理の有無による構造の変化を検証した。その結果、層間距離は微小な条件で変化すること、373 Kでの加熱処理で層間距離が減少することが確認された。また、加熱処理を行った層間化合物とアルデヒドとの反応性は低下することが分かった。原因として、層間中のアミノ酸分子の構造の影響が大きいことが推察された。

第二章第三節では、第二節で取り扱った層間化合物とポリプロピレン系樹脂の複合体からの揮発成分と樹脂臭気改良の検討を行った。揮発成分測定結果から、ハイドロタルサイトが有する酸吸着特性に加え、層間のアミノ基の効果により、ポリプロピレンから発生するアルキル酸、アルキルアルデヒドの両方の物質に対して揮発成分の低下効果を確認した。また、人間による臭気テストにより、ポリプロピレン樹脂の臭気の低減効果が確認できた。

第三章第一節では、第三章で取り扱う研究の背景、目的及び第三章の構成を記した。

第三章第二節では、アデノシンリン酸分子を層間に有するリン酸カルシウムの合成、キャラクターゼーションについて検討を行った。 $\alpha$ -TCPを出発物質としてアデノシンリン酸塩を作用させるとOCP骨格と推察される層間にアデノシンリン酸が取り込まれた層状化合物とDCPDの混合生成物が得られた。得られた混合物は、DCPD単体と比べて良好な細胞接着性を示した。

第三章第三節では、有機カルボン酸分子をpH調整することなく、OCP層間に取り込ませる新規な合成法、並びに反応生成物のキャラクターゼーション、並びに耐熱性に関して評価を行なった。カルボン酸を層間に有する層状OCPは、リン酸部分がカルボン酸分子に置換されているため、大きな耐熱性の向上が確認された。

第四章では、本研究を総括し、主な結果をまとめた。

### 論文審査の結果の要旨

近年、有機-無機ハイブリッド化による機能性材料の開発が盛んに行われ、分子レベルあるいはナノレベルで両者を複合化することで全く新規な特性を有する材料の合成を可能にしている。本論文では、ハイドロタルサイトやリン酸カルシウムなど無機化合物の層間をアミノ酸やアデノシンリン酸塩により修飾し新たな機能性材料の創成を行い、さらに、ポリマーへの複合化による化学物質吸着物質や生体材料などへの応用の可能性を調べている。

(1) 焼結復元法により、ハイドロタルサイトと酸性アミノ酸との層間化合物を合成し、得られた物質の組成、構造を検討し、層間距離の増大と共に酸性アミノ酸の取り込みが生じることを明らかにしている。得られた化合物の層間中におけるアミノ酸の構造はレイヤーに対して垂直に近い配位で存在することを明らかにしている。

(2) この層間化合物に気相中でアセトアルデヒドを作用させると、層間中の1級アミンと反応を起こしアセトアルデヒドを化学吸着することを見出している。

(3) ハイドロタルサイトと酸性アミノ酸の層間化合物の、合成再現性と加熱処理の有無による構造の変化を検証し、層間距離はわずかな合成条件で変化すること、及び373 Kにおける加熱処理で層間距離が減少することを確認している。また、熱処理条件を行った層間化合物とアルデヒドとの反応性は大きく低下することを見いだしている。

(4) ハイドロタルサイトとグルタミン酸系層間化合物をポリプロピレン系樹脂と複合化させ、ポリプロピレン樹脂からの揮発成分と樹脂臭気改良の検討し、ハイドロタルサイトが有する酸吸着特性に加え、酸性アミノ酸のインターカレーションによりアルデヒドとの反応性が付与され、ポリプロピレンから発生するアルキル酸、アルキルアルデヒドの両物質に対して揮発低減効果を見いだしている。人による臭気テストにより、ポリプロピレン樹脂の臭気低減効果が確認している。

(5) アデノシンリン酸分子を層間に有するリン酸カルシウムの合成、評価を行い、 $\alpha$ -TCPを出発物質としてアデノシンリン酸塩を作用させると、OCP骨格の層間にアデノシンリン酸が取り込まれた層状化合物とDCPDの混合生成物を得ている。得られた混合物の細胞接着性を評価し、DCPD単体と比べて良好な特性を有することを明らかにしている。

以上のように、本論文では、新たな有機-無機系のインターカレーション化合物を合成し、ハイドロタルサイト-アミノ酸系の合成ではアルデヒド吸収剤としての特性に優れることを見だし、CP-AMP 層間化合物の合成では新しい生体親和性材料の材料設計指針を与えている。これらの成果は、それぞれ、今後の臭気低減のための食品用ポリプロピレン添加剤用途やVOC 低減が望まれる自動車、建材用途への応用や、生体材料用途やドラッグデリバリーに代表される医薬品用途への展開の可能性を明らかにしている。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。