

メソポーラスシリカへのAuナノ粒子担持に関する基礎的研究

権堂, 貴志

<https://doi.org/10.15017/1654839>

出版情報：九州大学, 2015, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：全文ファイル公表済

氏 名 : 権堂 貴志

論 文 名 : メソポーラスシリカへの Au ナノ粒子担持に関する基礎的研究

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

物質を3次的にナノメートルオーダーまで小さくすると、サイズ効果と呼ばれるバルクとは異なる物性や化学反応性が発現する。このような物質はナノ粒子として知られ、これまでに、その特異な性質を活かした様々なアプリケーションに関する研究が盛んに行われている。Auナノ粒子は、サイズ効果を発現する典型的な物質であり、10 nm以下にサイズを制御することで、触媒活性を発現することが知られている。さらなる触媒活性の改善のためには、適切な触媒担体やAuナノ粒子合成法の選択が重要である。担体には、使用環境に即した熱的・機械的な安定性の他にも、大きな比表面積が求められ、特に、メソポーラスシリカは、これらの要件を満たす有望な担体である。また、析出沈殿法 (DP法) は、高い触媒活性を示す5 nm以下のAuナノ粒子を比較的容易に合成できる最も効果的な合成法である。このため、本論文では、大きな比表面積を有する担体として、メソポーラスシリカを、また、小さなAuナノ粒子を合成する手法として、DP法を選択した。DP法を用いてAuナノ粒子をメソポーラスシリカの細孔内へ担持するためには、等電点の高い物質をその骨格表面あるいは内部に導入し、シリカと水酸化金イオンの静電相互作用を引力として作用させる必要がある。

本論文では、担体としてメソポーラスシリカの一種であるSBA-15を用い、そのシリカ骨格内部に等電点の高いTiO₂ナノ粒子 (pH = 5 ~ 8) を埋め込んだメソポーラスシリカ (TiO₂-SBA15) を合成し、DP法を用いて細孔表面にAuナノ粒子を吸着可能にする方法を提案している。さらに、TiO₂添加量を変えた場合のAuナノ粒子の分散状態、ならびに、細孔内におけるAuナノ粒子のサイズ制御因子について議論している。

本論文の内容は、以下の5項に集約される。

- 1) 第1章では、本論文において研究の主題となるナノ粒子および触媒、Auナノ粒子触媒、メソポーラスシリカ担体、および、構造解析法について、その意義や重要性について概説し、最後に本論文の目的を述べている。
- 2) 第2章では、TiO₂-SBA15を合成するプロセスの確立、および細孔構造の最適化を行っている。HCl添加量および、熱処理温度などを合成パラメータとして、細孔配列、細孔サイズ、TiO₂の結晶構造などの観点から透過型電子顕微鏡 (TEM) 法や走査透過型電子顕微鏡 (STEM) 法などを用いて評価し、これらの因子の最適化を行い、TiO₂添加量の異なる TiO₂-SBA15 を作製した結果を述べている。

- 3) 第3章では、第2章で合成条件を最適化した TiO_2 -SBA15 を担体として用い、さらに、Au ナノ粒子を DP 法によって合成し、その分散状態の定量評価、ならびに触媒特性の TiO_2 添加量依存性について評価を行った結果を示している。また、この中で、細孔内における Au ナノ粒子の形成機構、および Au/ TiO_2 -SBA15 触媒上で確認されたサイズ効果について議論している。
- 4) 第4章では、Au ナノ粒子のサイズ制御因子を解明するために、STEM トモグラフィ、およびエネルギーフィルター TEM トモグラフィによる3次元ナノスケール解析を行っている。さらに、触媒反応前後および反応中のガス雰囲気下における Au ナノ粒子の形状・形態を調査するために、TEM/STEM 観察および環境制御型 TEM 観察を行っている。これらの観察から、Au ナノ粒子の3次元的な分散状態や TiO_2 ナノ粒子との位置的相関、結晶方位関係、および TiO_2 -SBA15 に担持された Au ナノ粒子の焼結耐性について調査した結果を述べている。
- 5) 第5章では、本論文により得られた結果を総括し、その意義について述べている。

〔作成要領〕

1. 用紙はA4判上質紙を使用すること。
2. 原則として、文字サイズ10.5ポイントとする。
3. 左右2センチ，上下2.5センチ程度をあげ，ページ数は記入しないこと。
4. 要旨は2,000字程度にまとめること。
(英文の場合は，2ページ以内にまとめること。)
5. 図表・図式等は随意に使用のこと。
6. ワードプロ浄書すること（手書きする場合は楷書体）。
この様式で提出された書類は，「九州大学博士学位論文内容の要旨及び審査結果の要旨」
の原稿として写真印刷するので，鮮明な原稿をクリップ止めで提出すること。