



Title	放射線を利用した非貴金属系ナノ粒子の合成および酸素還元反応触媒への応用
Author(s)	新吉, 直樹
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/101685
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (新 吉 直 樹)

論文題名	放射線を利用した非貴金属系ナノ粒子の合成および酸素還元反応触媒への応用
------	-------------------------------------

論文内容の要旨

本論文では、放射線照射を利用した非貴金属系ナノ粒子の合成とその触媒応用に関する研究成果について報告した。放射線照射によるナノ粒子合成法において、還元電位の低い非貴金属元素への適用として、Sn系およびNb系ナノ粒子の生成について実験的に検証し、その生成機構を検討した。また、触媒応用として、生成したナノ粒子を活かし、酸素還元反応活性に寄与する化学的および構造的要因について評価した。以下に論文の構成を述べる。

第1章では、緒言として放射線照射を利用した液相中での金属ナノ粒子の合成に関する研究の現状および、非貴金属元素への適用に関する課題について述べた。そして、既存の研究を通じての本研究の目的および、研究の構成を提示した。

第2章では、放射線照射を利用しSn系ナノ粒子の合成について実験的に検証し、その生成機構について検討した。金属Snナノ粒子の生成が可能であることを示した一方、担体の共存下では、担体表面に酸化物ナノ粒子が分散担持された。非貴金属であるSnを対象とし、粒子生成のメカニズムに関して重要な知見を提供した。放射線照射によるナノ粒子合成法は、非貴金属系において、酸化物ナノ粒子を担体表面に分散担持させる手法として有効である可能性が示唆された。

第3章では、放射線照射によってカーボン担持Nb酸化物系ナノ粒子を合成し、触媒構造と酸素還元反応活性との相関について検討した。また、放射線照射によるNb系ナノ粒子の生成過程について考察した。放射線照射によるナノ粒子合成と熱処理を組み合わせた手法は、熱処理に伴うNb酸化物系ナノ粒子触媒の粗大化を抑制しつつ、酸素還元反応活性の向上が可能であることを示した。また、熱処理前に高分子を添加することで、熱処理によりカーボン残渣が形成され、これがNb酸化物系ナノ粒子近傍の電子伝導パスとして機能し、電流密度が向上したことが示唆された。

第4章では、粒子径の異なるNb酸窒化物ナノ粒子がカーボン担体表面に担持された2種の触媒を合成し、酸素還元反応活性に対する粒子径の影響について検討した。また、Nb酸化物粒子への窒素ドーピング量、酸化物粒子近傍の電子伝導パスの状態が触媒活性に及ぼす影響についても評価した。Nb酸窒化物ナノ粒子の微細化は必ずしも酸素還元反応活性の向上に直結しないことが示された。また、酸化物系触媒における性能向上のためには、酸化物ナノ粒子近傍の電子伝導パスとして機能し得るグラファイト化されたカーボン残渣の形成と、酸化物ナノ粒子への適切な窒素ドーピングの両立が重要であると示唆された。

第5章は総括であり、本学位論文で得られた成果と展望について要約している。

本論文では、放射線照射による非貴金属系ナノ粒子の生成と、担体表面への酸化物ナノ粒子の分散担持に関する新たな基礎的知見を提供した。また、放射線照射によって調製した酸化物ナノ粒子を前駆体として熱処理により触媒を合成する複合的なプロセスは、触媒のモルフォロジー制御に有効であることを示した。本研究の成果は、非貴金属ナノ材料における放射線を用いた合成技術の発展に貢献し、さらに、酸化物系触媒における設計指針の構築に寄与するものである。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (新 吉 直 樹)			
論文審査担当者	(職)	氏 名	
	主 査	准教授	清野 智史
	副 査	教授	中川 貴
	副 査	教授	倉敷 哲生
論文審査の結果の要旨			
<p>本論文では、放射線照射を利用した非貴金属系ナノ粒子の合成とその触媒応用に関する研究成果について報告している。放射線照射によるナノ粒子合成法を、還元電位の低い非貴金属元素への適用を意図し、Sn 系および Nb 系ナノ粒子を対象として実験的な検証、および生成機構の検討を行っている。また得られた粒子の応用先として触媒応用を対象とし、酸素還元反応活性に寄与する化学的および構造的要因について評価している。</p> <p>第 1 章では、緒言として放射線照射を利用した液相中での金属ナノ粒子の合成に関する既往研究を整理した上で、非貴金属元素への適用に関する課題について述べている。それらを踏まえた上で、本研究の目的および論文構成を提示している。</p> <p>第 2 章では、放射線照射を利用し Sn 系ナノ粒子の合成について実験的に検証した上で、それらの生成機構について検討している。原料水溶液への放射線照射により、金属 Sn ナノ粒子の生成が可能であることが示されている。一方で、担体の共存下で合成した場合には、担体表面に酸化物ナノ粒子が分散担持することが報告されている。非貴金属である Sn を対象として、放射線照射下での粒子生成のメカニズムに関する重要な知見が提供されており、また同手法が酸化物ナノ粒子を担体表面に分散担持させる手法として有効である可能性が提示されている。</p> <p>第 3 章では、放射線照射を利用しカーボン担持 Nb 酸化物系ナノ粒子の合成を行い、また触媒構造と酸素還元反応活性との相関について検討している。放射線照射によるナノ粒子合成と熱処理を組み合わせた手法が提案され、Nb 酸化物系ナノ粒子触媒の粗大化を抑制しつつ、酸素還元反応活性の向上が可能であることが示されている。また、熱処理前に高分子を添加することで試料中にカーボン残渣が形成され、これが Nb 酸化物系ナノ粒子近傍の電子伝導パスとして機能し電流密度が向上したことが報告されている。</p> <p>第 4 章では、粒子径の異なる Nb 酸窒化物ナノ粒子がカーボン担体表面に担持された 2 種の触媒を合成し、酸素還元反応活性に対する粒子径の影響について検討している。その結果、ニオブ酸窒化物ナノ粒子の微細化は必ずしも酸素還元反応活性の向上に直結しないことが示されている。また Nb 酸化物粒子への窒素ドーピング量、酸化物粒子近傍の電子伝導パスの状態が触媒活性に及ぼす影響についても評価している。酸化物系触媒における性能向上のためには、酸化物ナノ粒子近傍の電子伝導パスとして機能し得るグラファイト化されたカーボン残渣の形成と、酸化物ナノ粒子への適切な窒素ドーピングの両立が重要であることが提示されている。</p> <p>第 5 章は総括であり、本学位論文で得られた成果および将来展望が要約されている。</p> <p>以上のように、本論文は放射線を利用した新規ナノ粒子材料の合成技術の発展に貢献し、さらに非白金系酸化物触媒における材料設計指針の構築に貢献するものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。</p>			