



Title	Control of structure and orientation in mesostructured self-assemblies and their application to electrodes and catalysts
Author(s)	Li, Xinyu
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/105266
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (李 新鈺)	
論文題名	Control of structure and orientation in mesostructured self-assemblies and their application to electrodes and catalysts (メソ構造自己集合体の構造および配向の制御と電極・触媒への応用)
論文内容の要旨	
規則性メソポーラスカーボン (OMC) は新エネルギー領域でのベース材料として注目されている。触媒や電極材料などの各応用に向けて、細孔の構造制御、細孔径制御、細孔容積の改善等に関する研究が盛んに行われている。合成方法として、ブロックコポリマーの自己集合体をテンプレートとして用いるソフトテンプレート法が提案されている。しかし、そのメカニズムは反応条件によって異なり、複雑であるため、原料の分子間で起こる反応が自己組織化に与える詳細な影響については未だ不明な点が多い。本論文は、各原料や条件の自己組織化への影響解明と、それらに基づいた構造制御の設計指針の構築及び高機能性メソポーラス材料の開発について述べたものである。 第2章では、無溶媒条件下でのソフトテンプレート法によるOMCの構造制御について、硝酸マグネシウム添加による前駆体の溶融温度、メソ孔の細孔構造及びパッキングパラメーターにあたえる影響を評価し、メソ細孔容積の向上及びその際の自己組織化のメカニズムを解明し、得られたOMCは電気二重層キャパシタ (EDLC) に有利であることを確認した。第3章では、第2章に基づき、外部交流電場をかけ、マグネシウムイオンを移動させることにより、炭素前駆体の自己集合体の配向が制御した。ヘキサゴナル配列したカラム状液晶ミセルは、イオンが移動する方向に配列することを見出した。本特性を利用して、配向性OMCの合成に成功した。第4章では、第2章に基づき、自己集合体に親疎水性の異なるアミノ酸を加えることで、複合体のパッキングパラメーターを制御し、メソ構造体の構造が制御可能であることを見出した。また、OMCの構造によるEDLCへの影響を評価し、1次元細孔構造はEDLCに有利であることを確認した。 第5章では、メラミンを主なカーボン源とし、炭化温度を調整し異なるリン源を混合し賦活することで、マイクロ孔を導入した高窒素・リン含有ナノポーラスカーボンを合成し、得られた材料はEDLCや二酸化炭素還元反応に有利であることを確認した。第6章では、ゼオライト触媒の外表面にメソ孔導入し、ポリオレフィン分解における触媒活性を評価した。有機鋳型分子を含有したZSM-5ゼオライトの外表面を溶解させ (脱シリカ処理)、メソ孔をゼオライトの外表面に導入した。得たゼオライトは、ポリオレフィン分解反応の初期触媒活性の向上を確認した。	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (李 新鈺)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教 授	西山 憲和
	副 査	教 授	平井 隆之
	副 査	教 授	水垣 共雄
	副 査	准教授	内田 幸明

論文審査の結果の要旨

多孔質材料の一つに分類される規則性メソポーラスカーボンは、比表面積と細孔容積が大きく、耐薬品性と機械的安定性、高導電性などの特性を有する。そのため、様々な分野で利用可能であり、低炭素社会の実現に向けて新エネルギー領域でのベース材料として注目されている。均一な細孔を形成させるために、両親媒性界面活性剤などのブロックコポリマーの自己集合体をテンプレートとして用いるソフトテンプレート法が提案されている。この方法では、静電相互作用、水素結合などの相互作用を介して炭素前駆体とブロックコポリマーが自己組織化することで、秩序構造を有するメソ構造が形成される。しかし、ソフトテンプレートの自己組織化のメカニズムは反応条件により複雑である。そこで本研究では、各原料や条件の自己組織化への影響解明と、構造制御に向けた設計指針の構築を行った。また、無溶媒条件下でのソフトテンプレート法による規則性メソポーラスカーボンの構造制御を行った。硝酸マグネシウム添加によるメソ孔の細孔径、細孔容積、細孔構造及びパッキングパラメーターに与える影響を評価し、メソ細孔容積の向上及びその際の自己組織化のメカニズムを解明した。上記の結果をもとに、外部交流電場をかけ、マグネシウムイオンを移動させることにより、炭素前駆体の自己集合体の配向を制御した。添加された硝酸マグネシウムは、自己集合体の疎水性コア部に存在し、交流電場によって1次元方向に移動する。ヘキサゴナル配列したカラム状液晶ミセルは、イオンが移動する方向に配列することを見出した。また、配向した炭素前駆体の液晶分子を重合し炭化することで、配向性メソポーラスカーボンの合成に成功した。

以上のように、学位申請者は、自己組織化による規則的メソポーラスカーボンの構造制御を行った。これらの成果は、規則性メソポーラスカーボンの細孔構造および細孔制御法の新たな設計指針を構築し、吸着剤や電極の開発などの実用化の加速に貢献するものであり、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。