



| | |
|--------------|---|
| Title | Kinetic Studies on Preparation Processes of Functional Ultrafine Particles Using Reverse Micellar Systems |
| Author(s) | 佐藤, 博 |
| Citation | 大阪大学, 1996, 博士論文 |
| Version Type | VoR |
| URL | https://doi.org/10.11501/3113066 |
| rights | |
| Note | |

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【 6 】

| | |
|------------|--|
| 氏名 | 佐藤 博 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博士 (工学) |
| 学位記番号 | 第 12646 号 |
| 学位授与年月日 | 平成 8 年 6 月 27 日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科 化学系専攻 |
| 学位論文名 | Kinetic Studies on Preparation Processes of Functional Ultrafine Particles Using Reverse Micellar Systems (逆ミセル系を用いる機能性超微粒子の調製プロセスに関する速度論的研究) |
| 論文審査委員 | (主査) 教授 駒沢 熊 (副査) 教授 平田 雄志 教授 新田 友茂 教授 上山 惟一 教授 米山 宏 助教授 平井 隆之 |

論文内容の要旨

物質を超微粒子化することによって、半導体のバンドギャップエネルギーの増大などの変化があり、したがって物質に新規な機能を付加できる可能性を持っている。そのためには粒子径の制御された超微粒子の調製プロセスの開発が必要である。逆ミセル溶液中のナノメータスケールの水相を反応場として、超微粒子を調製できることが報告されているが、粒子径の制御に必要な速度論的な粒子生成機構の研究はほとんど行われていない。

本研究では、各種の調製（反応の開始）方法を用い、迅速な反応で瞬間に粒子生成が開始される系と、逆に徐々に進行する系という両極端の反応系を対象とした。これらの粒子生成過程を全域にわたって吸収スペクトルによって追跡し、それに基づいたシミュレーション（モデル化）を行った。まず、逆ミセル溶液に反応物の有機溶媒溶液を注入する方法を用いてチタンテトラブトキシドの加水分解による TiO₂超微粒子の調製を行った。粒子生成条件は核発生に必要な数の加水分解種を含有する逆ミセル数で制御されることを明らかにした。次に、反応物を溶解した二つの逆ミセル溶液を混合する方法を用いて金属硫化物 (CdS, ZnS および PbS) とハロゲン化銀の超微粒子を調製し、この場合核発生と粒子成長は瞬間に終了し、その後の凝集は複数の粒子を含有する逆ミセル数で制御されることを明らかにした。また、逆ミセル溶液に反応気体を注入する方法を用いて金属硫化物超微粒子を調製し、粒子成長の速度は気体の溶解速度で制御されることを明らかにした。さらに、粒子の複合化の例として、二種の物質を同時に析出させた混晶粒子と、粒子を別の物質でコーティングした積層型粒子を調製し、混晶粒子の組成が各物質の溶解度で制御されることと、この場合にも先の粒子生成機構が適用できることを確認した。そして、調製された超微粒子の機能として、光照射による水の分解（水素発生）を検討し、CdS と ZnS の混晶型が優れていることと、バンドギャップエネルギーが小さいため活性を持たない PbS を超微粒子化することによって活性を付加できることを明らかにした。

論文審査の結果の要旨

物質を超微粒子化することによって、半導体のバンドギャップエネルギーの増大などの変化があり、したがって物質に新規な機能を付加できる可能性を持っている。そのためには粒子径の制御された超微粒子の調製プロセスの開発が必要である。逆ミセル溶液中のナノメータスケールの水相を反応場として、超微粒子を調製できることが報告されているが、粒子径の制御に必要な速度論的な粒子生成機構の研究はほとんど行われていない。

本論文では、各種の調製（反応の開始）方法を用い、迅速な反応で瞬間に粒子生成が開始される系と、逆に徐々に進行する系という両極端の反応系を対象とした。これらの粒子生成過程を全域にわたって吸収スペクトルによって追跡し、それに基づいたシミュレーション（モデル化）を行った。まず、逆ミセル溶液に反応物の有機溶媒溶液を注入する方法を用いてチタンテトラブトキシドの加水分解による TiO_2 超微粒子の調製を行った。粒子生成条件は核発生に必要な数の加水分解種を含有する逆ミセル数で制御されることを明らかにした。次に、反応物を溶解した二つの逆ミセル溶液を混合する方法を用いて金属硫化物 (CdS , ZnS および PbS) とハロゲン化銀の超微粒子を調製し、この場合核発生と粒子成長は瞬間に終了し、その後の凝集は複数の粒子を含有する逆ミセル数で制御されることを明らかにした。また、逆ミセル溶液に反応気体を注入する方法を用いて金属硫化物超微粒子を調製し、粒子成長の速度は気体の溶解速度で制御されることを明らかにした。さらに、粒子の複合化の例として、二種の物質を同時に析出させた混晶粒子と、粒子を別の物質でコーティングした積層型粒子を調製し、混晶粒子の組成が各物質の溶解度で制御されることと、この場合にも先の粒子生成機構が適用できることを確認した。そして、調製された超微粒子の機能として、光照射による水の分解（水素発生）を検討し、 CdS と ZnS の混晶型が優れていることと、バンドギャップエネルギーが小さいため活性を持たない PbS を超微粒子化することによって活性を付加できることを明らかにした。

以上のように、本論文は超微粒子調製については、(1)粒子は反応物の溶解、化学反応、核発生、粒子成長および粒子凝集の各段階を経て生成し、各段階の速度式を定式化できること、(2)律速段階の式が重要であり、以降の段階の速度を制御できること、さらに(3)シミュレーションの手法によって異なる生成条件下の生成粒子径や数を求めることができるることを明らかにした。よって、博士論文に値するものと判定する。