



| | |
|--------------|---|
| Title | Studies on Visible-Light-Driven Photocatalysis on Platinum Nanoparticles/Semiconductor Heterojunction |
| Author(s) | 坂本, 浩捷 |
| Citation | 大阪大学, 2017, 博士論文 |
| Version Type | VoR |
| URL | https://doi.org/10.18910/61815 |
| 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 (坂本浩捷) | |
| 論文題名 | Studies on Visible-Light-Driven Photocatalysis on Platinum Nanoparticles/Semiconductor Heterojunction (白金ナノ粒子／半導体ヘテロ接合系による可視光応答型光触媒反応に関する研究) |
| 論文内容の要旨 | |
| <p>金属ナノ粒子／半導体ヘテロ接合からなる光触媒系は、金属ナノ粒子の幅広い可視光吸収（400－800 nm）に基づく高エネルギー電子（ホットエレクトロン）の生成により、可視光応答型光触媒への展開が大きな注目を集めている。これらの研究では、金（Au）ナノ粒子のバンド内遷移に基づく検討が盛んに進められているものの、その活性は不十分である。本論文では、白金（Pt）ナノ粒子のバンド間遷移に基づく可視光吸収に着目し、Ptナノ粒子／半導体酸化物ヘテロ接合系による高効率な可視光応答型光触媒反応についての研究を記述したものである。本論文は3章より構成される。</p> <p>第1章では、Pt/TiO₂触媒が可視光照射下、Au触媒を上回る効率でアニリンの酸素酸化反応を進め、ニトロソベンゼンを選択的に生成することを明らかにし、Ptナノ粒子を用いる可視光応答型光触媒の設計が可能であることを明らかにした。第2章では、Ptに銅（Cu）を合金化したナノ粒子をTiO₂に担持したPtCu/TiO₂触媒が、可視光下、酸素酸化反応をPt/TiO₂の2倍程度高い効率で進めることを明らかにし、金属ナノ粒子／半導体間に形成されるショットキー障壁を下げることで高効率電子注入を実現させることを見出した。第3章では、Ptナノ粒子をタンタル酸化物（Ta₂O₅）に担持したPt/Ta₂O₅触媒を開発し、本触媒が酸素酸化反応を著しく高い活性で進めることを明らかにした。本触媒では、Ptナノ粒子から半導体への電子注入は起こらず、Ptナノ粒子上で酸化・還元が進行する特異なメカニズムで反応が進むことを明らかにした。</p> <p>以上のように本研究では、金属ナノ粒子／半導体ヘテロ接合系での高効率酸素酸化を目指した研究を進めた。ショットキー障壁を下げることによる高効率電子注入が可能であること、さらに金属／半導体間の強い接合により電子注入過程のない高効率な反応系が設計できることを示した。特に後者の反応系に関する報告は、これまでほとんどなく、金属ナノ粒子の可視光吸収を効率よく光触媒反応へ利用するための新たな触媒設計指針を示した。</p> | |

論文審査の結果の要旨及び担当者

| 氏 名 (坂 本 浩 捷) | | | |
|-----------------|-----|-----|---------|
| | (職) | 氏 名 | |
| 論文審査担当者 | 主 査 | 教 授 | 平 井 隆 之 |
| | 副 査 | 教 授 | 實 川 浩一郎 |
| | 副 査 | 教 授 | 中 西 周 次 |
| | 副 査 | 准教授 | 白 石 康 浩 |

論文審査の結果の要旨

金属ナノ粒子／半導体ヘテロ接合からなる光触媒系は、金属ナノ粒子の幅広い可視光吸収（400－800 nm）に基づく高エネルギー電子（ホットエレクトロン）の生成により、可視光応答型光触媒への展開が大きな注目を集めている。これらの研究では、金（Au）ナノ粒子のバンド内遷移に基づく検討が盛んに進められているものの、その活性は不十分である。本論文では、白金（Pt）ナノ粒子のバンド間遷移に基づく可視光吸収に着目し、Ptナノ粒子／半導体酸化物ヘテロ接合系による高効率な可視光応答型光触媒反応についての研究を記述したものである。本論文は3章より構成される。

第1章では、Pt/TiO₂触媒が可視光照射下、Au触媒を上回る効率でアニリンの酸素酸化反応を進め、ニトロソベンゼンを選択的に生成することを明らかにし、Ptナノ粒子を用いる可視光応答型光触媒の設計が可能であることを明らかにした。第2章では、Ptに銅（Cu）を合金化したナノ粒子をTiO₂に担持したPtCu/TiO₂触媒が、可視光下、酸素酸化反応をPt/TiO₂の2倍程度高い効率で進めることを明らかにし、金属ナノ粒子／半導体間に形成されるショットキー障壁を下げることで高効率電子注入を実現させることを見出した。第3章では、Ptナノ粒子をタンタル酸化物（Ta₂O₅）に担持したPt/Ta₂O₅触媒を開発し、本触媒が酸素酸化反応を著しく高い活性で進めることを明らかにした。本触媒では、Ptナノ粒子から半導体への電子注入は起こらず、Ptナノ粒子上で酸化・還元が進行する特異なメカニズムで反応が進むことを明らかにした。

以上のように本研究では、金属ナノ粒子／半導体ヘテロ接合系での高効率酸素酸化を目指した研究を進めた。ショットキー障壁を下げることによる高効率電子注入が可能であること、さらに金属／半導体間の強い接合により電子注入過程のない高効率な反応系が設計できることを示した。特に後者の反応系に関する報告は、これまでほとんどなく、金属ナノ粒子の可視光吸収を効率よく光触媒反応へ利用するための新たな触媒設計指針を示すものである。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。