The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Design of Ag-based Plasmonic Nanocatalysts Using Mesoporous Silica for Efficient Catalysis under Visible Light Irradiation
Author(s)	Verma, Priyanka
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/67148
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

Form 3

Abstract of Thesis

Name (Priyanka VERMA)	
Title	Design of Ag-based Plasmonic Nanocatalysts Using Mesoporous Silica for Efficient Catalysis under Visible Light Irradiation (メソポーラスシリカを利用する可視光応答型プラズモニック銀ナノ粒子触媒の設計)

Abstract of Thesis

The thesis contains eight chapters including introduction and general conclusions.

Chapter I introduces the background and fundamentals of Localized Surface Plasmon Resonance (LSPR) phenomenon, recent progress in the field of noble metal plasmonic catalysis, mechanisms of enhancements and its potential applications in various fields.

Chapter II reports the synthesis of color-controlled spherical Ag NPs and nanorods, with features that originate from their particle sizes and morphologies, within the mesoporous structure of SBA-15.

Chapter III describes the synthesis and characterization of uniformly dispersed Pd/Ag bimetallic catalyst supported on mesoporous silica SBA-15. Size- and color-controlled Ag/SBA-15 synthesized by the microwave-assisted alcohol reduction method in the previous chapter is decorated with Pd nanoparticles via LSPR-assisted deposition under visible light irradiation to create bimetallic catalyst effective for H_2 production from ammonia borane and Suzuki-Miyaura coupling reaction.

In Chapter IV, visible light responsive bimetallic Pt/Ag nanocatalyst supported on mesoporous silica was successfully prepared utilizing a similar strategy of microwave-assisted reduction followed by LSPR deposition of Pt on Ag NPs. The performance of prepared catalysts is explored for the visible light enhanced catalytic activity in the H_2 production from ammonia borane.

Chapter V describes the study of series of bimetallic M/Ag (where M represents Pd, Ru, Ni and Co metallic species) nanorod (NR)-based plasmonic photocatalysts with 0.5 wt % loading of M on Ag (1.0 wt %) synthesized within the mesoporous channels of SBA-15. The photocatalytic activity is assessed by H_2 production from ammonia borane and chemical reduction of 4-nitrophenol to 4-aminophenol under visible light irradiation.

In Chapter VI, a systematic comparison of plasmonic properties and catalytic performances is conducted with Pd deposited bimetallic nanostructures of plasmonic Ag and Au. The obtained Pd/Au and Pd/Ag bimetallic catalysts exhibited specific photocatalytic activities in the Suzuki-Miyaura coupling reaction and H_2 production from ammonia borane.

The Chapter VII deals with the synthesis of Ag-based plasmonic catalyst supported on mesoporous silica with isolated and tetrahedrally coordinated single-site Ti-oxide moieties, namely, Ag/Ti-SBA-15, with the purpose of utilizing the broad spectral range of solar energy.

Finally, overall conclusions are presented in chapter VIII.

様式７

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　Priyanka VERMA　）		
論文審査担当者		（職）　氏　名
	主 査	教授　山下　弘巳
	副 査	教授　藤本　愼司
	副 査	教授　関野　徹
	副 査	准教授　森　浩亮

論文審査の結果の要旨

本論文では、無尽蔵に存在する光エネルギーを化学反応に利用することを目的とし、メソポーラスシリカの規則的ナノ空間と Ag や Au ナノ粒子の持つ局在表面プラズモン共鳴(Localized Surface Plasmon Resonance: LSPR)特性とを活かした新しい触媒の設計・開発を行うとともに、有用な触媒反応への応用と触媒の詳細なキャラクタリゼーションを行っている。本論文は以下のように要約される。

第１章では、本論文の研究背景、目的および各章の概要を述べている。

第２章では、マイクロ波加熱法を利用して Ag ナノ粒子をメソポーラスシリカの規則的ナノ細孔空間に固定化することで、Ag ナノ粒子の形状を精密制御し、同時に局在表面プラズモン光吸収特性と触媒特性を自在制御する手法を開発している。このような Ag プラズモン光触媒において LSPR に由来する触媒活性向上の度合いが、Ag の形状および光吸収特性に大きく依存することを明らかにしている。

第３章では、固定化された Ag ナノ粒子上に第二金属成分を選択的に導入する手法として、LSPR を利用した光還元析出法を新たに提案している。Ag プラズモン光触媒に Pd ナノ粒子を固定化することで、アンモニアボランからの水素生成反応や、鈴木宮浦カップリング反応に高い活性を示すバイメタリックプラズモン光触媒を開発している。

第４章では、LSPR を利用した光還元析出法により Pt ナノ粒子を固定化したメソポーラスシリカ担持 Ag バイメタリックプラズモン光触媒を合成し、アンモニアボランからの水素生成反応に応用している。LSPR に基づく Ag 粒子内電荷分離および Ag 粒子から Pt 粒子への電子移動が触媒活性向上の要因であることを明らかにしている。

第５章では、LSPR を利用した光還元析出法により種々の第二金属粒子を固定化した Ag バイメタリックプラズモン光触媒を合成し、アンモニアボランからの水素生成反応や、ニトロ化合物の還元反応への触媒特性を評価している。Ag ナノ粒子の LSPR により第二金属種の触媒活性の飛躍的な向上を達成するとともに、LSPR が触媒活性に及ぼす影響を明らかにしている。

第６章では、メソポーラスシリカの細孔内に Ag および Au ナノ粒子を固定化したプラズモン光触媒を合成し、それらの触媒特性の違いについて系統的に比較評価している。触媒活性の向上率はプラズモン粒子の種類に依存し、Ag, Au プラズモン粒子の LSPR 特性を制御することにより異なる波長の光を触媒反応に利用できることを見出している。

第７章では、Ag ナノ粒子固定化メソポーラスシリカのシリカマトリクス内に孤立 Ti 種を導入することにより、紫外光領域にも光吸収特性を付与し、太陽光に含まれる可視光～紫外光の幅広い光を利用して触媒反応を促進させるプラズモン光触媒を創製している。Ag ナノ粒子と孤立 Ti 種との異種界面に形成される相互作用により、アンモニアボランからの水素生成反応において触媒活性が飛躍的に向上するという新奇な触媒作用を見出している。

第８章では、本論文の総括を行っている。

以上のように、本論文はナノ多孔体とプラズモンナノ粒子の特性を活かした新しい触媒設計、光エネルギーを利用した効率的な化学変換プロセスの創成を行っており、化学工学ならびに材料工学分野の基礎・応用面に大きく貢献する研究内容である。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。