The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Synthesis and applications of Yolk-shell nanostructured silicatematerials encapsulating functional nanoparticles
Author(s)	藤原, 健成
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/69571
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

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　藤原　健成　）	
論文題名	Synthesis and applications of Yolk-shell nanostructured silicatematerials encapsulating functional nanoparticles （機能性粒子を内包したYolk-shell構造シリカ材料の合成と応用）

論文内容の要旨

本論文では高機能、高耐久性を有した環境浄化材料の創成を目的とし、機能性粒子を内包したシリカ中空粒子の合成や細孔構造の制御を行うとともに、大気汚染物質の除去機能の評価と合成した材料の詳細なキャラクタリゼーションを行った。

第１章では、本研究の背景、目的および各省の概要を述べた。

第２勝では、水中油型(O/W)マイクロエマルジョンを利用したTiO_2ナノ粒子内包シリカ中空粒子の合成方法の創出を行った。合成したシリカ中空粒子はTiO_2ナノ粒子を多孔質シリカシェルで覆ったYolk-shell型構造をとっており、シリカの吸着・濃縮効果により揮発性有機物(VOC)の光分解反応において高い光触媒効率を発揮するだけでなく、細孔構造に起因する分子サイズ選択性も有していることが明らかになった。

第３章では、TiO_2ナノ粒子を内包したYolk-shell型光触媒の合成プロセスにおいて、シリカシェル形成時にタンパク質を添加し、シリカシェルの細孔構造の制御を行った。両親媒性であるタンパク質はシリカシェル内部に有機テンプレートとして取り込まれ、焼成処理によりシリカシェル内に取り込まれたタンパク質を除去することで、Yolk-shell型構造を維持したままシリカシェルのメソ細孔を拡張できることを見出した。中空シリカの細孔径・表面積が増加することにより光触媒効率及び分子サイズ選択性の向上が確認された。

第４章では、TiO_2ナノ粒子を内包したYolk-shell型光触媒とセルロース繊維を、官能基修飾による化学結合や粘着剤を利用した物理接着により複合化することで光触媒複合紙を調製した。調製した光触媒複合紙において光触媒は紙を構成する有機繊維表面に高分散に固定化されており、紙の高い通気性から気相中の揮発性有機物(VOC)の光分解反応において優れた光触媒機能を発揮した。さらに、シリカシェルの保護効果により、Yolk-shell型光触媒を複合化した紙は高い光触媒機能を維持しつつ、光触媒作用による有機繊維の劣化を抑制できることが確かめられた。

第５章では、溶媒抽出法によるテンプレート除去とマイクロ波照射による加熱還元により、銀ナノ粒子を内包した中空シリカ粒子を調製した。調製した銀ナノ粒子内包中空シリカは揮発性硫化物(硫化水素、*tert*-ブチルメルカプタン)に対し高い吸着能を示した。さらに、シリカシェルの細孔径に由来した分子サイズ選択性により、吸着阻害物存在下でも揮発性硫化物に対する吸着能が維持できることがわかった。また、中空シリカの保護効果により銀ナノ粒子の凝集が抑制され、熱処理後も吸着能が維持されることが確認できた。

第６章では、本論文の総括を行った。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　藤原　健成　）			
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、高機能・高耐久性を有した環境浄化材料の創成を目的とし、機能性粒子を内包した中空シリカ粒子の合成や細孔構造の制御を行うとともに、大気汚染物質の除去機能の評価と合成した材料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。

（1）水中油型(O/W)マイクロエマルジョンの利用によるTiO_2ナノ粒子内包中空シリカ粒子の合成を行っている。合成した中空シリカ粒子はTiO_2ナノ粒子を多孔質シリカシェルで覆ったYolk-shell型構造をとっており、シリカの吸着・濃縮効果により揮発性有機物の光分解反応において高い光触媒効率を発揮するだけでなく、細孔構造に起因する分子サイズ選択性も有していることを明らかにしている。

（2）シリカシェル形成時にタンパク質を有機テンプレートとして添加することでシリカシェルの細孔構造の制御を行っている。細孔径の拡大により、基質のコア物質へのアクセス性向上に伴う光触媒機能の向上を達成するとともに、分子サイズ選択性の向上へも寄与することを見出している。

（3）官能基修飾による化学結合や粘着剤を利用した物理接着の利用によるTiO_2内包中空シリカ光触媒の紙への複合化を行っている。得られた光触媒複合紙は優れた光触媒機能を発揮しつつ、シリカシェルの保護効果により光触媒作用による有機繊維の劣化が抑制され、紫外光照射下でも紙の強度が維持されることが示されている。

（4）溶媒抽出法によるテンプレート除去とマイクロ波照射による加熱還元により、銀ナノ粒子を内包した中空シリカ粒子の調製を行っている。得られた銀ナノ粒子内包中空シリカは揮発性硫化物に対する高い吸着能と、シリカシェルの細孔径に由来した分子サイズ選択性を有することが見出されている。また、中空シリカへの内包による銀ナノ粒子の凝集抑制効果により、加熱による賦活化処理後も吸着能が維持されていることを明らかにしている。

以上のように、本論文では、ナノ多孔体の特性を活かした新しい触媒設計、簡便な合成プロセスの創成を行っており、本論文は、材料工学分野の基礎・応用面に、ひいてはグリーン・サステイナブル・プロセスにも大きく貢献する内容である。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。