

論文要旨

区分	甲	氏名	江崎 優人
<p>論文題名</p> <p>ゾルーゲル法による酸化チタン系複合光触媒の高機能化に関する研究</p> <p>論文の要旨</p> <p>本論文では環境水中の汚染物質の除去を対象とした光触媒による光化学反応の高効率化および可視光の利用を目的として、ゾルーゲル法を用いてシリカ-メソポーラスチタニア及び酸化タングステン-チタニア複合光触媒を合成し、その光触媒活性について論じた。</p> <p>第 2 章では汚染物質が希薄な系に対して高効率で光分解反応を行うために、汚染物質の拡散及び吸着性能を向上させる目的でゾルーゲル法を用いてチタニア内のメソ孔を発達させると共に、比表面積が大きな多孔質材料であるシリカを担持した。その結果、$\text{Si}/(\text{Si}+\text{Ti})$のモル比を 0.091 に調製したシリカ-チタニア複合光触媒では、紫外光照射後 2 時間でメチレンブルーを検出限界以下まで光分解することができた。これは従来のチタニア光触媒に比べて 10 倍以上の反応速度であった。メチレンブルーの光分解について、従来は Langmuir 型の速度式を仮定して解析する手法がとられたが、本反応系では光触媒表面に吸着したメチレンブルーが活性種と反応する過程と、溶液中のメチレンブルーが直接活性種と反応する過程に分離し、それらを総括した光分解速度式と吸着速度式とからなる連立微分方程式を数値的に解くことにより、各過程の反応速度定数を得た。その結果、吸着の影響を除外しても $\text{Si}/(\text{Si}+\text{Ti})$のモル比 0.091 の複合光触媒が最も活性が高いことがわかった。複合光触媒のキャラクタリゼーションの結果を加えて検討したところ、チタニア上のシリカの分散性が反応活性に大きく影響していることを明らかにした。</p> <p>第 3 章では、チタニアとの協同効果によって可視光照射下で高い光触媒性能を発揮することが期待される酸化タングステンの複合化を行い、可視光応答光触媒として酸化タングステン-チタニア複合光触媒を合成した。酸化タングステンは水熱法、酸沈殿法、有機溶媒法の 3 つの方法で合成した結果、酸沈殿法で合成した酸化タングステンが最も分散粒子径が小さく、比表面積が大きいことを明らかにした。この酸化タングステンをチタニアゾルと任意の比率で混合し焼成することで酸化タングステン-チタニア複合光触媒を得た。従来検討されてきた酸化タングステン-チタニア複合光触媒では、数 10mol%以内の量で酸化タングステン粒子をチタニア表面に分散させて、その光触媒活性を検討しているが、ここでは酸化タングステン微粒子をチタニアゾルと混合させることで、酸化タングステンの含有率が 10、50 および 90%の複合光触媒を合成し、それらの光触媒活性を評価した。その結果、50%の酸化タングステンを含有した複合光触媒は、酸化タングステ</p>			

ン表面にチタニアが部分的に被覆した粒子がみられ、これらの粒子と液相で成長したほぼ同じ粒子径のチタニア粒子が凝集した構造を持つことで、酸化タングステンとチタニアとの接触効率が最も高くなるために、紫外光、可視光いずれの照射下条件でも最も高い活性を示すことを明らかにした。

第4章では、高分散の可視光応答型酸化タングステン-チタニア複合光触媒を得るために、イオン液体を利用した一段ゾルーゲル法を適用した。チタニア単独ゾルでは焼成温度 400°C 付近でアナタース型からルチル型への結晶転移が起こるが、この程度の低温焼成では酸化タングステンは非晶質であり光触媒活性を示さないが、高温で焼成すると逆にチタニアが光触媒活性の低いルチル型に転移する。この複合ゾル中にイオン液体を加えることで、アナタース型からルチル型への結晶転移を抑制する効果があるために、高温で焼成した場合にアナタース型チタニアの結晶構造を維持したままで、高い結晶性を持つ酸化タングステンを生成することに成功した。生成した酸化タングステン-チタニア複合光触媒はメチレンブルーの可視光照射下での光分解に高い光触媒活性を示した。次にこの酸化タングステン-チタニア複合光触媒を用いてヒ素化合物の光酸化について検討したところ、3 価のヒ素イオン含む液に対して可視光照射をすると溶液中で 5 価のヒ素イオンを検出できたことから複合光触媒表面で光酸化反応が進行していることがわかった。

以上、本論文は発展途上国で使用可能な浄水処理プロセスに適用できる高機能光触媒の開発を目的として、汚染物質濃度が希薄な場合に、光触媒活性の向上と共に総合的な光反応効率を向上させる方法として光触媒に吸着性を付与することが重要であることを示した。また、再生可能エネルギーである太陽光を利用することを想定して、可視光応答型複合光触媒を創成し、電子励起の結果として生成するラジカルによる有機汚染物質の光分解について検討すると共に、可視光条件でも正孔によるヒ素化合物の直接光酸化反応が進行することを明らかにした。本研究における成果は機能性光触媒の開発に関する新しい指針を与えており、化学工学、分析化学、そして環境科学分野への応用に寄与するものと期待される。