

|   |  |          |           |
|---|--|----------|-----------|
| 氏名  | 廣瀬 慶計  |          |           |
| 授与した学位  | 博士   |          |           |
| 専攻分野の名称   | 理学   |          |           |
| 学位授与番号  | 博乙第 4488 号   |          |           |
| 学位授与の日付   | 平成30年 3月23日  |          |           |
| 学位授与の要件   | 博士の論文提出者<br>(学位規則第4条第2項該当)                             |          |           |
| 学位論文の題目   | 高い可視光活性を有する窒素含有チューブ状 TiO <sub>2</sub> の調製とその光触媒としての可能性 |          |           |
| 論文審査委員  | 教授 黒田 泰重   | 教授 鈴木 孝義 | 准教授 大久保貴広 |
| <b>学位論文内容の要旨</b>  |  |          |           |
| <p>酸化チタン (TiO<sub>2</sub>) は紫外光を吸収する光触媒として知られている。本研究では、特異的な構造を有するチューブ状構造の酸化チタン (T-TiO<sub>2</sub>) に着目し、窒素をドーピングすることで可視光応答性を発現させ、ドーピングされた窒素の状態を解明および光照射により活性化される活性種を解明し、光触媒反応のメカニズムを明らかにした。T-TiO<sub>2</sub>は表面に強い酸性質を有し、それを利用することで窒素を含有する塩基性分子を強く吸着するため、通常の粒子状 TiO<sub>2</sub>と比較して、窒素のドーピングが効率よく行うことができた。また、ドーピングされた窒素種は主として表面付近に存在する NH<sub>4</sub><sup>+</sup>種とバルクに存在する N<sup>-</sup>種であった。さらに、ドーピングできる窒素の量は窒素を含有する塩基性分子の種類や濃度により変化させることができた。</p> <p>ドーピングする窒素量をさらに向上させるために、NH<sub>3</sub>水溶液中での水熱処理を行う新規調製プロセスの開発を試みた結果、チューブ状の構造に加えて、従来の製法よりもドーピングできる窒素量が向上し、可視光領域に大きな吸収をもつことが明らかとなった。また、このサンプルは酢酸水溶液による洗浄プロセスを行うことで、O<sub>2</sub>存在下において可視光を照射することにより、反応性の高い O<sub>2</sub><sup>-</sup>種を多量に作り出すことができ、さらに N<sub>2</sub>でさえも可視光照射により、活性種を形成するということが明らかとなった。また、このサンプルは光触媒性能が従来の調製方法のサンプルよりも倍程度に向上した。これらの結果から、本研究において開発した製法により可視光下における光触媒反応に対して有効な特定の窒素種を優先的にドーピングできることが明らかになった。</p> |  |          |           |

## 論文審査結果の要旨

近年、大気や水質汚染などの環境問題やそれらの現象とも深く関連するエネルギー問題などへの関心が高まり、クリーンで再生可能なエネルギー源として、太陽光が着目されている。特に、太陽光を利用した水の分解による“水素社会”実現のための“科学”が求められているところである。そのような中、紫外光を利用した高活性な光触媒として知られる酸化チタン( $\text{TiO}_2$ )は、それらの問題解決のための光触媒として注目されてきた。しかし、この試料の最大の弱点は太陽光に多く含まれる可視光が利用できないことである。そこで、本研究では、チューブ状構造に由来する、大きな表面積を有する $\text{TiO}_2$ を合成し、その試料に $\text{N}^-$ イオンをドーピングすることによって、可視光を効率よく利用できるチューブ状 $\text{TiO}_{2-x}\text{N}_x$ 試料の調製とその特性解析をめざした。研究過程で、種々の窒素源を用いた窒素導入法の検討、調製した試料による小分子（酸素や窒素）の活性化機構、有機物の分解過程の解明などを行うことによって、高い可視光応答性を示す試料の開発に成功した。結果として、一段階で、効率よくチューブ状 $\text{TiO}_{2-x}\text{N}_x$ 試料合成を行う方法の開発を行い、このチューブ状 $\text{TiO}_{2-x}\text{N}_x$ 試料の可視光応答型光触媒としての有用性を示した。一連の研究成果は、今後のクリーンで再生可能なエネルギー源として太陽光を利用した再生可能なエネルギー社会の構築のためにも貢献できる内容である。無機化学分野の発展に貢献できる事はもちろん、触媒化学の分野にも多大の貢献ができるものと期待する。

以上の点から、本研究は学位〔博士（理学）〕に値する。