

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	界面活性剤を用いた水熱法による機能性セラミックナノ粒子の形状・サイズ制御
Title(English)	Shape- and size- control of functional ceramic nanoparticles synthesized by hydrothermal method using surfactant
著者(和文)	牧之瀬佑旗
Author(English)	Yuki Makinose
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10189号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:松下 伸広,川路 均,富田 育義,稲木 信介,平山 雅章
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10189号, Conferred date:2016/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻：物質電子化学 専攻
Department of
学生氏名：牧之瀬 佑旗
Student's Name

申請学位 (専攻分野)：博士 (工学)
Academic Degree Requested Doctor of
指導教員 (主)：松下 伸広
Academic Advisor(main)
指導教員 (副)：川路 均
Academic Advisor(sub)

要旨 (和文 2000 字程度)
Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文では ” Shape- and size- control of functional ceramic nanoparticles synthesized by hydrothermal method using surfactant”(界面活性剤を用いた水熱法による機能性セラミックナノ粒子の形状・サイズ制御)というタイトルで英文にて記述され、Chapter 1～7 の 7 章から構成されている。

Chapter 1 ”Introduction”ではナノ粒子の歴史的背景、セリアや酸化鉄の基礎物性や応用例について紹介した。界面活性剤を用いたオレイン酸被覆水熱成長法(OMHT 法)を含めた各種溶液プロセスや作製した試料の評価方法について概説し、研究目的が OMHT 法による析出結晶面制御やメカニズム解明、新規水熱合成法の開発であることを述べた上で、本論文の章構成を示した。

Chapter 2 ”Facet control of ceria nanoparticles using sodium oleate”では、OMHT 法におけるオレイン酸イオンとセリウムイオンの比率([Ole/Ce])の調整でセリアナノ粒子の析出結晶面が制御できることを明らかにした。高分解能 TEM 像(HRTEM) の FFT 解析から、[Ole/Ce]>1/2 で主に{100}に囲まれたキューブ状ナノ粒子、[Ole/Ce]<1/4 で主に{111}に囲まれた多角状ナノ粒子になることを示した。さらに結晶面を断面方向から見た電荷密度バランスを考慮すると{100}は{111}に比べて不安定であるが、オレイン酸イオンが上下対称に配置すると安定化することを明らかにした。

Chapter 3 ”Ceria nanoparticles synthesized by hydrothermal method using sodium stearate”では、界面活性剤としてステアリン酸ナトリウムを用いたセリアナノ粒子の形態制御を行った。ステアリン酸ナトリウムの場合はオレイン酸ナトリウムの場合と異なり、セリウムイオンとの比を変えても粒子の析出面が変化せず、{100}に囲まれたキューブ状の粒子が成長することを示し、ステアリン酸イオンの方がオレイン酸イオンよりも{100}に結合し易い理由についてシミュレーションにより検証した。

Chapter 4 ”Oriented attachment study of ceria nanoparticles”では、セリアナノ粒子同士が配向面を揃えて接合・成長するオリエンテッドアタッチメント(OA)のパターン化や特異的な OA による結晶の異方的な成長に関する観察・解析を行った。OMHT 法による[Ole/Ce]=1/4 および 1/8 の比率で作製したセリアナノ粒子の TEM 像の解析から、{111}および{100}同士で OA が起こり易いことや、[Ole/Ce]により配向面が制御できることを明らかにした。また、{111}および鏡面对称な{111}面による OA が多数観察されることから、その制御により新規な構造を持つナノ粒子合成が可能であると考えられる。

Chapter 5 ”Synthesis of Sm doped ceria-carbonate composite and the ionic conductivity measurement for electrolyte of solid oxide fuel cell working at intermedia temperature”では、中温領域で高い導電率を実現できる材料として炭酸塩被覆 SDC 複合体(SCC)に着目し、OMHT 法で作製した SDC ナノ粒子を用いた試料についてイオン導電性の評価を行った。Li₂CO₃、Na₂CO₃ 複合炭酸塩を用いた LiNa-SCC はこれまでの報告例と比べても高い導電率を達成可能であるとともに、OMHT 法が結晶性に優れるナノ粒子合成プロセスとして有用であることを示した。

Chapter 6 ”Development of new hydrothermal method for controlling exposed facet of iron oxide nanoparticles”では、新規溶液プロセス「オレイン酸ゲル水熱成長法」を提案した。OMHT 法の作製条件を種々検討する中で、オレイン酸-鉄錯体とアンモニア水との反応が粒子形状に大きく影響を与えることを見だし、これを利用してオレイン酸-鉄錯体だけをアンモニア水と十分反応させた後に原料液に戻すオレイン酸ゲル水熱成長法(OGHT 法)を開発した。同プロセスにより、これまでは報告例の少ない擬キューブ状あるいはプレート状のマグネタイトや菱面体状ヘマタイトナノ粒子の作製に成功した。

Chapter 7 ”General conclusions” では、本研究で得られた結果と議論を総括した。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻：物質電子化学 専攻
Department of
学生氏名：牧之瀬 佑旗
Student's Name

申請学位(専攻分野)：博士 (工学)
Academic Degree Requested Doctor of
指導教員(主)：松下 伸広
Academic Advisor(main)
指導教員(副)：川路 均
Academic Advisor(sub)

要旨(英文 300 語程度)
Thesis Summary (approx.300 English Words)

This thesis was described on the syntheses of ceria and iron oxide nanoparticles by an oleate-modified hydrothermal (OMHT) method controlling their exposed facet.

It is written in English and consists of 7 chapters.

In chapter 1, nanoparticle histories, oleate modified hydrothermal growth method and motivations of exposed facet control were briefly introduced.

In chapter 2, the exposed facets of ceria NPs synthesized by OMHT method were controlled via using various oleate ion to cerium ion ratio ([Ole/Ce]) ratio. Cubic and polyhedral ceria nanoparticles were synthesized at high (1 and 1/2) and low (1/4 and 1/8) [Ole/Ce] ratio, respectively. The stability of {111}, {100} and oleate ion sandwiched {100} stacked layer were discussed considering their electron density balance.

In chapter 3, ceria NPs was synthesized by hydrothermal method using sodium stearate at various stearate/cerium ion ratios. The results were compared with those using sodium oleate and validated using computer simulations. The result suggested that stearate ion more strongly adsorbed to ceria {100} facet than oleate ion.

In chapter 4, the mechanism of oriented attachment (OA) of ceria nanoparticles was discussed. OA of ceria nanoparticles has the possibility to be utilized as the size and shape control processes controlling various experimental conditions.

In chapter 5, the composite of Sm doped ceria (SDC) nanoparticles synthesized by OMHT method and carbonate salt (SCC) was synthesized by the solid phase process.

The ionic conductivity of SCC samples was evaluated by four probe direct current method in some atmospheres. The SCC samples in which Li and Na carbonate were used showed high conductivity in humid air.

In chapter 6, a novel hydrothermal method, named as oleate gel hydrothermal (OGHT) method, was invented to control exposed facet of iron oxide nanoparticles. The method used mixture of alkaline reacted with oleate iron complex and iron ion solution. Hexagonal plate and quasi cubic shape NPs were synthesized by OGHT method.

In chapter 7, the thesis has been summarized.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).