

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)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	牧之瀬 佑旗	
論文審査 審査員		氏名	職名		
	主査	松下 伸広	准教授	平山 雅章	准教授
	審査員	川路 均	教授		
		富田 育義	教授		
稲木 信介		准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は "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ている。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ている。

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ている。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ている。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ている。

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ている。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た上で、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ている。

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・解析を行っている。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と述べている。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の可能性について述べている。

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ている。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できることを示すとともに、OMHT法が結晶性に優れたナノ粒子合成プロセスとして有用であることも明らかにしている。

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」を提案している。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ている。

以上を要するに本論文は、機能性ナノ粒子の構造・機能制御を可能とした上に、新規溶液プロセスの提案を行うなど、工学上、工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士(工学)として十分な価値があるものと認められる。