

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	MoOxで修飾したTiドーピングヒドロキシアパタイトの作製と光触媒活性
Title(English)	Preparation and photocatalytic activity of MoOx-modified titanium-doped hydroxyapatite
著者(和文)	JiraborvornpongsaNoppakhate
Author(English)	Noppakhate Jiraborvornpongsa
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11284号, 授与年月日:2019年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:中島 章,宮内 雅浩,松下 伸広,生駒 俊之,松下 祥子
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11284号, Conferred date:2019/9/20, 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	Noppakhate Jiraborvornpongsa	
		氏名	職名			氏名	職名
論文審査 審査員	主査	中島 章	教授	審査員	松下 祥子	准教授	
	審査員	宮内 雅浩	教授				
		松下 伸広	教授				
		生駒 俊之	教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Preparation and photocatalytic activity of MoO_x -modified titanium-doped hydroxyapatite (MoO_x で修飾した Ti ドープヒドロキシアパタイトの作製と光触媒活性)」と題し、英文で書かれ、5 章よりなっている。

第 1 章「Introduction (緒論)」では、光触媒として実用化されている Ti ドープヒドロキシアパタイト (以下 Ti-HAp) に関する既往の研究と問題点について概説し、本論文の目的と意義について述べている。

第 2 章「Comparative study on the effect of Fe-modification onto TiO_2 and Ti-HAp powders (TiO_2 と Ti-HAp 粉末への Fe 修飾の効果の比較)」では、 TiO_2 光触媒の可視光化で実績のある Fe 修飾を Ti-HAp に対して適用し、活性向上の可能性を調査している。 TiO_2 は Fe 修飾により可視光応答型光触媒となり、焼成の有無により可視光化の機構が異なることが示唆されたが、Ti-HAp に対しては、可視光応答性も活性向上も得られなかった。その理由として、Ti-HAp の価電子帯を形成している酸素が、修飾した Fe と混成軌道を形成しにくいためと考察している。

第 3 章「Modification of Ti-HAp surface with a CaMoO_4 aqueous solution using impregnation and calcination cycle (CaMoO_4 水溶液による含浸-焼成サイクルを用いた Ti-HAp 表面の修飾)」では、 CaMoO_4 の水溶液に Ti-HAp を含浸し、その後焼成する工程を繰り返すことにより Ti-HAp の表面に Mo 化合物を修飾し、得られた試料の物性や光触媒活性について調査している。修飾により比表面積やバンドギャップに大きな変化は見られなかったが、Ti-HAp の表面には 2 nm 程度の微細な粒子が確認され、紫外光照射下での気相の 2-プロパノール分解による CO_2 発生量から見積もられた光触媒活性は、未修飾試料の 9 倍に向上することを見出している。この原因について第一原理計算により検討したところ、Ti-HAp の粒子表面に修飾された Mo 酸化物は、Ti-HAp のバンドギャップ内に電子状態密度を有することが明らかになり、紫外線照射下において Mo(V) のピークが現れること、光ルミネッセンスの強度が修飾により低下することを確認している。これらの結果から、Ti-HAp の価電子帯の酸素から Ti の軌道に励起した電子が、修飾した Mo 化合物に移動することで電荷分離効率が向上し、活性が向上したと考察している。また計算結果から修飾した化学種は Mo の氧化物クラスター (MoO_x) の可能性が高いと述べている。

第 4 章「Modification of Ti-HAp surface with an ethanol solution of molybdenyl acetylacetonate using chemisorption calcination cycle (CCC) technique (Mo アセチルアセトン塩のエタノール溶液による化学吸着・焼成・サイクル法 (CCC 法) を用いた Ti-HAp 表面の修飾)」では、Mo のアセチルアセトン塩のエタノール溶液に Ti-HAp を含浸し、その後焼成する過程を繰り返す手法 (CCC 法) により Ti-HAp の表面に MoO_x を修飾し、得られた試料の物性や光触媒活性について調査している。修飾前後での Ti-HAp の物性は CaMoO_4 の水溶液を用いた場合と同様であったが、CCC 法で Ti-HAp 表面に修飾された粒子は CaMoO_4 の水溶液を用いた場合よりも微細で、光触媒活性も未修飾品の 13 倍に向上することを見出している。活性の向上は修飾された MoO_x の微細化と、CCC 法による修飾量の増加によると考察しており、この処理により、Ti をドープしていない HAp に対しても若干の光触媒活性が得られること、これは修飾された MoO_x 自体の励起によるものであることを明らかにしている。また、Ti-HAp に対しては MoO_x の励起による活性への寄与の割合は小さく、活性向上の主な機構は CaMoO_4 の水溶液を用いた修飾の場合と同様の電荷移動による電荷分離効率の向上であると考察している。

第 5 章「Summary (総括)」では各章の内容を総括し、今後の課題や展開について述べている。

これを要するに本論文は、Ti-HAp の表面に MoO_x を適切な形で修飾することにより、この材料の光触媒活性を 10 倍以上に向上させることに成功し、その機構を実験と計算から明らかにしたものであり、工学上ならびに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)の学位論文として十分価値あるものと認められる。