

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Modification and Functionalization Methods of Semiconductor Photocatalysts for Improved Wastewater Treatment Performance
著者(和文)	ToeErlandy Dwinanto
Author(English)	Toe Erlandy
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11633号, 授与年月日:2020年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:中崎 清彦,宮内 雅浩,大川原 真一,吉村 千洋,ANDREWS EDEN MARIQU,KURNIAWAN WINARTO,日野出 洋文
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11633号, Conferred date:2020/9/25, 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	Erlandy Dwinanto Toe		
論文審査 審査員		氏 名	職 名		氏 名	職 名
	主査	中崎 清彦	教授	審査員	吉村 千洋	准教授
	審査員	Eden G. Mariquit	特任講師		Winarto Kurniawan	助教
		宮内 雅浩	教授		日野出 洋文	名誉教授
		大川原 真一	特任教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Modification and Functionalization Methods of Semiconductor Photocatalysts for Improved Wastewater Treatment Performance」と題し、英文で書かれ、以下の 5 章から構成されている。

第 1 章「Introduction and Study Background」では、人口増加および産業の発展にともなって深刻化する環境問題、特に水質汚染の問題について有効な対策が求められている現状を挙げて、対策として考えられる光触媒による処理、特に半導体型光触媒の特徴およびその応用の可能性について言及し、本研究の目的である半導体型光触媒の性能向上の考え方、さらに論文構成について概説している。

第 2 章「Synthesis of N-doped Mesoporous TiO₂ by Facile One-step Solvothermal Process for Visible Light Photocatalysis」では、窒素ドーピングの方法を用いて可視光下で光触媒活性を有する酸化チタンの開発を検討した。さらに、環境にやさしいプロセスを確立するために、光触媒を一段階で合成する方法を検討し、より少量の試薬を使用するプロセスを目指した。窒素ドーピングによって酸化チタンのバンドギャップを縮小し、その結果として可視光の光子エネルギーを用いて電子・正孔対を生成できる可視光触媒の性質を有する酸化チタンの合成に成功している。また、メチレンブルーおよびメチルオレンジを模擬汚染物質として用いた廃水処理の実験において、合成した窒素ドーピング酸化チタンは効率よく両者を分解した。さらに、CTAB (cetyltrimethylammonium bromide) テンプレートをを用いて表面修飾することで光触媒表面にメソ孔を形成し、比表面積を大きくすることで、触媒活性を高めている。また、メソ孔の形成によって、光触媒を小粒子化しなくても比表面積を大きくすることができるため、水処理での使用後に沈殿・回収が容易という利点を考えて、比較的大きい粒子に成形することができた。従来の光触媒と比べて、合成した光触媒の沈殿速度は著しく速く、回収性も優れていたが、実用化するにはより効率的な回収方法を確立する必要があることを提言している。

第 3 章「Fe₃O₄/BiVO₄ Composite Magnetic Catalyst for Simultaneous Cr(VI) Reduction and Methylene Blue Degradation」では、第 2 章の結果を受け、より効率的な回収方法を確立するため、p 型半導体である Fe₃O₄ を光触媒として使用し、その常磁性を活かした磁場による回収の可能性を検討した。さらに、触媒活性を向上させるために、Fe₃O₄ よりも貴な価電子帯を有する BiVO₄ を混合し、光酸化および光還元の両方の作用を有する複合光触媒の開発を試みた。ナノサイズ Fe₃O₄ の合成に成功し、開発した触媒が超常磁性を示した。それによって磁場を用いた回収ができ、触媒の回収性が第 2 章で開発したものよりも著しく向上した。また、拡散反射分光法の分析結果から、Fe₃O₄・BiVO₄ 複合物は Fe₃O₄ および BiVO₄ の両者の吸収スペクトルを示したため、Fe₃O₄・BiVO₄ が p-n ヘテロ結合を形成し、複合触媒の合成に成功したことが確かめられた。なお、水処理実験の結果から、Fe₃O₄・BiVO₄ 複合物が、有機汚染物質の分解だけではなく、重金属を還元し無害化するというさらに優れた性能を示すことを確かめた。しかし、一方では p-n ヘテロ結合を形成した Fe₃O₄・BiVO₄ は直接電荷移動が起きる傾向を示し、その影響で触媒活性の低下が起きてしまうため、より効率的な光触媒を開発するには直接電荷移動を防ぐ方法を検討する必要があることを提言している。

第 4 章「Si@Au (core@shell) in CuBi₂O₄/BiVO₄ as Plasmonic Z-scheme Photocatalyst for Effective Photocatalytic Removal of Phenol」では、第 3 章で特定した p-n ヘテロ結合の弱点である直接電荷移動を防ぐため、プラズモン粒子と Z スキーム半導体を組合せた光触媒システムの開発を検討した。本検討ではプラズモンナノ構造の Si@Au(Si・Al コアシェル)を固体触媒として使用し、Z スキームを発現する CuBi₂O₄・BiVO₄ と複合した。ナノ構造の Si@Au が合成できたことを確認するため、試料のキャラクタリゼーションとともに、有限差分法による数値シミュレーションをおこなったところ、局所表面はプラズモン共鳴を示し、ナノ構造の Si@Au の合成に成功したことを確かめた。さらに、ナノ構造の Si@Au がフォトルミネセンススペクトルを示さないため、電荷再結合を防ぐ働きを有することがわかった。加えて、CuBi₂O₄・BiVO₄ へのナノ構造の Si@Au の添加によって、プラズモン Z スキーム電荷移動光触媒の合成に成功した。触媒の水処理実験結果から、本光触媒はメチレンブルーおよびフェノールを分解する高い能力を示し、メチレンブルーの分解能力データの比較から、本光触媒は第 2 章・第 3 章で開発した光触媒より高い活性を示し、本方法で最も活性の高い触媒を得ることができることを明らかにした。

第 5 章「Conclusions」では、以上の結果を総括している。

以上要するに、本論文は、ドーピング、複合物、プラズモン Z-スキーム法という複数の光触媒の活性向上方法を用いて高効率な半導体型光触媒の開発を検討し、加えて触媒の作用機構を明らかにしたもので、光触媒、さらにその廃水処理への応用の分野に関して工学上、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)の学位論文として十分価値があるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」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。