

氏名(本籍)	Ellawala Kankanamge Chandima Pradeep (スリランカ)
学位の種類	博士(学術)
学位記番号	甲第284号
学位授与年月日	平成28年3月18日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項
研究科・専攻名	工学研究科・基盤工学専攻
学位論文題目	単純ソルボサーマル法による、制御された原子組成、ナノ構造及び形状を有する複合金属酸化物ナノ粒子集合体合成 Simple solvothermal synthetic approach to mixed metal oxide nanoassemblies with controlled atomic compositions, nano-structures, and morphologies

論文審査	(主査) 高知工科大学	教授	小廣	和哉
	高知工科大学	教授	西脇	永敏
	高知工科大学	教授	杉本	隆一
	高知工科大学	教授	古田	守
	高知工科大学	教授	八田	章光

審査結果の要旨

1. 論文の評価

論文審査意見(主たる研究成果を特に独創的な点と学術的に重要な成果に焦点をあてて記載)

本論文には、触媒、色材、機能性材料、デバイス、医薬品、遺伝子操作等に亘る広範な分野で極めて重要な金属酸化物ナノ粒子複合体を得るための新規方法論が記述されている。本研究では、高温・高圧の超臨界流体を反応場とするソルボサーマル合成法に着眼し、次の新しい成果を得ている。

まず、中空球状多孔質の $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ および ZnO-TiO_2 複合金属酸化物ナノ粒子集合体を、極めて簡便にかつ迅速に得る独創的な合成手法を開発した。すなわち、アルミニウムイソプロポキシドあるいは酢酸亜鉛とチタンイソプロポキシドおよびフタル酸のメタノール溶液を封管中で加熱するのみという究極的に簡便なソルボサーマル法により中空球状多孔質複合金属酸化物ナノ粒子集合体を得ることに成功し、この合成法の一般性を証明した。得られた $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ 複合ナノ粒子集合体を構成するアナターゼ型 TiO_2 微結晶は、 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ で1時間焼成してもルチル型結晶に転移しないという驚異的な耐熱性を示した。また、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ 複合ナノ粒子集合体においては、焼成することでアナターゼ型 TiO_2 微結晶のバンドギャップエネルギーを $3.12\text{--}3.21\text{ eV}$ の間で自由に調整可能なことを明らかにした。

次に、気相反応触媒として関心の高い $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$ 複合金属酸化物ナノ粒子集合体に関し、二種類の金属酸化物を異なる形状、すなわち均一状、ドメイン状、コアシェル状に、作り分ける単純合成手法を確立した。硝酸セリウムとオキシ硝酸ジルコニウムとギ酸のメタノール溶液をソルボサーマル処理する際に、加熱速度を変えることにより、均一状あるいはドメイン状に CeO_2 と ZrO_2 が複合化した球状多孔質ナノ粒子集合体を一段階反応で得た。また、球状 ZrO_2 ナノ粒子集合体と硝酸セリウムおよびギ酸のイソプロピルアルコール分散液を同様にソルボサーマル処理することにより、コアシェル状複合金属酸化物ナノ粒子集合体を得た。このように、反応条件をわずかに変えるだけで混合状態の異なる球状多

孔質複合金属酸化物ナノ粒子集合体を作り分ける合成法はこれまで全く先例がなく、きわめて独創的な研究成果である。

さらに、これまで極めて困難であるとされていた MgO ナノ粒子合成にこのソルボサーマル合成法を適用した。ここでは、金属塩、溶媒、構造規定剤、反応温度 等の諸条件の組み合わせを精査し、直径が約 4 nm の超微小 MgO ナノ粒子を合成する画期的手法を世界に先駆けて開発した。得られた粒子は深紫外発光デバイス開発の鍵物質として期待される。

以上のように、本研究で新たに編み出された合成手法および得られた各種金属酸化物ナノ粒子集合体は、ナノ粒子合成、触媒化学、材料化学、応用物理、デバイス工学 等の学問領域で大きな学術的意義を持つ。従って本申請論文は博士（学術）の学位にふさわしいものと判断される。

2.審査の経過と結果

- (1) 平成28年1月13日 博士後期課程委員会で学位論文の受理を決定し、5名がその審査委員として指名された。
- (2) 平成28年2月12日 公開論文審査発表会及び最終試験を実施した。
- (3) 平成28年2月17日 博士後期課程委員会で学位授与を可とし、教育研究審議会で承認された。