

(続紙 1)

京都大学	博士 (エネルギー科学)	氏名	Supawan Joonwichien
論文題目	Magnetic Field Effects on Heterogeneous Photocatalytic Degradation of Methylene Blue (メチレンブルーの不均一光触媒分解反応における磁場効果)		
(論文内容の要旨)			
本論文は、メチレンブルーの不均一光触媒分解反応における磁場効果を論じた結果をまとめたもので、6章からなっている。 第1章は序論で、光触媒の諸性質についてまず述べ、有機染料の酸化亜鉛および酸化チタン光触媒による分解反応および化学反応に対する磁場についてこれまで報告されている結果を簡単にまとめた後、本論文の目的および構成について述べている。 第二章は実験方法で、光触媒およびメチレンブルー材料について、光触媒反応の実行方法、ガス導入実験方法、溶存酸素測定方法、メチレンブルー濃度測定および解析方法および温度変化による効果、光触媒反応動力学の解析法について述べている。紫外線照射には安定的な照射が可能なLEDランプを用いている。 第三章は磁場のない状態で酸化亜鉛によるメチレンブルーの光触媒反応実験の結果について、メチレンブルー濃度の影響、光（紫外線）照射強度の影響およびメチレンブルー溶液調合後の経過時間について調査し、それらがメチレンブルー分解に与える影響についてメカニズムを提案し考察している。 第四章は磁場中における酸化亜鉛によるメチレンブルー光触媒反応実験の結果について、濃度、光強度、磁場強度およびメチレンブルー溶液調合後の経過時間について調査し、磁場により明らかに分解反応に差があること確認している。それらの結果について、二次反応速度式で整理し、さらに磁場強度依存性、溶存酸素量の影響についても調査し、すでに発表されている化学反応の磁場効果との比較検討を行っている。 第五章は粒径の異なる二種類の酸化チタンによる磁場中のメチレンブルー光触媒反応実験について、同様のパラメータを変えて実験を行っている。酸化亜鉛については磁場が反応を促進しているのに対して、酸化チタンでは磁場が反応を抑制していることを発見している。また、磁場吸着の実験も行っており、その場合も磁場効果は両触媒で符号が異なることを報告している。さらに、溶存酸素量の影響についても調査し、分解量と溶存酸素の関係においては両触媒で同様の結果を示している。 第六章は第三章から第五章まで得られた結果について、可能性のあるメカニズムについて調査している。溶存酸素量が一つの目安であることが分かっているので、溶存酸素量をアルゴンガス、空気、酸素ガスの導入により変化させて実験を行い、必ずしも溶存酸素量では説明できないことを報告している。これらを踏まえて、可能なメカニズムとしてメチレンブルー分子と酸素分子との会合および電子スピンの効果により説明を試みている。			

第七章は結論であり、本論文の各章を要約したのち、全体を通じての結論を述べており、本研究で発見したメチレンブルーの光触媒分解反応における磁場の影響について、再現性のある結果が得られたこと、酸化亜鉛では磁場が反応促進し、酸化チタンでは反応抑制すること、両触媒ともにメチレンブルー溶液調合後の経過時間に依存し、特に溶存酸素濃度が因子の一つであること、また磁場吸着についても光触媒分解反応の同じ傾向をしめしていることなどについてまとめた後、メカニズムをさらに詳細に分析するための今後の研究の方向性を示している。

(論文審査の結果の要旨)

化学反応速度が磁場により影響をうけることについては多くの報告がこれまでになされているが、光触媒反応についてはこれまでに酸化チタンを用いた数例の報告があるのみであり、実験結果報告が少なく、未だ機構の解明にまでは至っていない。本論文は、酸化亜鉛光触媒に着目し、そのメチレンブルー色素の光分解挙動を種々の条件下で磁場強度を変化しつつ調べ、またアナターゼ型酸化チタン光触媒と比較することにより光触媒反応の磁場効果の機構解明を試みた研究である。得られた主な成果は次のとおりである。

- 1、 酸化亜鉛光触媒および酸化チタン光触媒におけるメチレンブルー水溶液の分解反応速度について、再現性のある実験に成功し、本実験条件の範囲では酸化亜鉛では磁場により反応が促進されるが、酸化チタンにおいては抑制されることを見出した。
- 2、 初期濃度、光強度、メチレンブルー調合後の経過時間、溶存酸素濃度、磁場強度、が磁場効果を支配している因子であることを明らかにし、特にこの中で調合後の経過時間が重要であり、経過時間により溶存酸素が変化していることを見出した。
- 3、 溶存酸素濃度と光触媒分解反応との関係を調べるため、アルゴンガス、空気、酸素ガスを溶液に吹き込み実験を行ったところ、アルゴンガスにおいては磁場効果がみられず、空気、酸素ガスにおいては酸化亜鉛においても磁場により反応が抑制されることを見出し、磁場効果を支配している因子が複数存在していることを明らかにした。
- 4、 磁場効果を支配しているメカニズムとしてメチレンブルー-酸素複合体の生成と光触媒分子との吸着、分解反応におけるラジカル対の項間交差に基づき考察し、電子スピンの環境で決まる g 値の差 Δg 、超微細相互作用、およびその複合機能の可能性が高いことを明らかにした。

本研究で得られた成果は、光触媒反応の磁場効果についての基礎的な知見だけでなく、磁場による光触媒反応の制御など種々の応用も考えられ学術上、実際上価値のあるものである。よって、本論文は博士（エネルギー科学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成23年8月24日実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。

論文内容の要旨及び審査の結果の要旨は、本学学術情報リポジトリに掲載し、公表とする。特許申請、雑誌掲載等の関係により、学位授与後即日公表することに支障がある場合は、以下に公表可能とする日付を記入すること。

要旨公開可能日： 年 月 日以降