

氏名	KIKI KURNIAWAN		
授与した学位	博士		
専攻分野の名称	学術		
学位授与番号	博甲第 5621 号		
学位授与の日付	平成29年 9月29日		
学位授与の要件	環境生命科学研究科 環境科学専攻 (学位規則第4条第1項該当)		
学位論文の題目	Fabrication and photocatalytic properties of carbon nanotube/C ₆₀ heterojunction decorated with TiO _x (TiO _x で修飾されたカーボンナノチューブ/C ₆₀ ヘテロ接合の作製と光触媒応用)		
論文審査委員	准教授 高口 豊	教授 木村 邦生	教授 木村 幸敬
	講師 田嶋 智之		
学位論文内容の概要			
<p>In this thesis, the author describes an effective strategy to enhance the photocatalytic activity of SWCNT/fullerodendron photocatalytic system. A new coaxial photosensitizer with a TiO_x shell as an electron-extraction layer covering a SWCNTs/C₆₀ interface was fabricated to explore the photocatalytic H₂ evolution from water. We also present an alternative and simple method for the fabrication of a photocathode based on SWCNTs, fullrodendron and TiO_x.</p> <p>In chapter 1, the author introduces a brief overview of the global energy problems and the necessity of displacement of fossil fuels by renewable energys. One important and potential technology related this concept is using solar energy through photocatalysis. Since photocatalytic water splitting producing H₂ energy from water relieve the problem of the energy crisis and global warming. Development of efficient photocatalysts has attracted a considerable attention across a broad range of environmental and energy-related fields.</p> <p>In chapter 2, the author describes an effect of TiO_x shell on photocatalytic activity of the SWCNT-photocatalyst. A new coaxial photosensitizer with a TiO_x shell as an electron-extraction layer that covers a SWCNTs/C₆₀ interface, <i>i.e.</i>, a SWCNT/fullerodendron/TiO_x coaxial nanowire, has been fabricated. Due to the presence of the TiO_x shell, the SWCNT/fullerodendron/TiO_x coaxial nanowire shows an enhancement of H₂ evolution efficiency (AQY = 47%), which is higher than that of SWCNT/fullerodendron (AQY = 12%), under irradiation with visible light ($\lambda = 450$ nm).</p> <p>In chapter 3, the author describes a fabrication of a photocathode based on the SWCNT-photocatalyst. The photocathode, a FTO/(6,5)-enriched SWCNT/fullerodendron/TiO_x/Pt, displayed photoelectrochemical water splitting in an aqueous electrolyte solution with a negative onset potential of -0.3 V vs. Ag/AgCl, which is 0.1 V more positive in comparison to the SWCNT electrode. Upon visible light irradiation ($\lambda > 422$ nm), the photocathode displayed photoelectrochemical water splitting.</p> <p>In chapter 4, the author describes the conclusion of this thesis. TiO_x shell of the SWCNT/fullerodendron/TiO_x is efficient to exhibits a high activity in the catalytic H₂ evolution from water under irradiation with visible light, because the electron-extraction layer of TiO_x not only accelerates the electrontransfer from C₆₀ to TiO_x but also decelerates undesirable back electrontransfer. After deposition Pt nanoparticles on the surface of the photocathode, FTO/(6,5)-enriched SWCNT/fullerodendron/TiO_x, photoinduced electrontransfer from SWCNTs to Pt nanoparticles proceeded smoothly to improve overall photoelectrochemical water splitting.</p>			

論文審査結果の要旨

半導体性カーボンナノチューブ (s-SWCNTs) は、カイラル指数に応じた様々な光吸収帯を有しており、太陽光スペクトルのほぼ全域をカバーすることが可能であることから、太陽光エネルギー変換素子の光吸収材料として注目を集めている。しかし、s-SWCNTsには励起子の結合エネルギーが非常に大きい ($> 100 \text{ meV}$) という問題点があり、s-SWCNTsの光励起を利用したエネルギー変換素子の例はごく限られていた。

最近、p型半導体材料であるs-SWCNTの側面にn型半導体材料であるフラーレン (C_{60}) を自己組織化により配置したナノ同軸ワイヤー状のヘテロ接合界面を構築し、そのp/n接合界面のバンドオフセットを利用することで励起子の解離が可能となることが明らかとされ、ここで生成した電子を利用した還元反応により、水から水素が発生する光触媒機能が発現することが報告された。これにより、従来困難であった、近赤外光を利用した水素製造が可能となるため、s-SWCNTsの光触媒への応用が今後ますます重要になることが予想される。

そこで、本論文では、従来から C_{60} 層を含む有機薄膜太陽電池において電子抽出層として利用されている TiO_x 層を、s-SWCNT/ C_{60} ヘテロ接合界面の外側に導入した新たなs-SWCNT/ C_{60} / TiO_x ナノ同軸ワイヤーを作製し、それを光増感剤として用いた光水素発生触媒機能について検討した。興味深いことに、可視単色光 (波長 450 nm) 照射下、s-SWCNT/ C_{60} のみからなるナノ同軸ワイヤー光触媒において観測された量子収率 (0.12) に比べ、シェル部に TiO_x 層を導入した光触媒の量子収率 (0.47) は、おおよそ4倍高く、 TiO_x 層が光触媒の高活性化に大きく寄与することを明らかとした。

以上の成果は、s-SWCNTの光触媒応用において、側面への無機半導体層導入の効果を明確に示した初めての例であるとともに、太陽光エネルギー変換効率向上に対し、きわめて重要な知見と新手法を提案していることから、本論文は、博士 (学術) の学位論文に値するものと認める。