

報告番号	甲 第 12050 号
------	-------------

## 主 論 文 の 要 旨

**論文題目**     **Solution Plasma Synthesis and Applications  
of Organic Carbons - Inorganic Hybrid  
Materials**  
(ソリューションプラズマによる無機・有機  
カーボンハイブリッド材料の合成と応用)

**氏 名**     **金 慧 玟**

## 論 文 内 容 の 要 旨

ソリューションプラズマに関する研究は、近年、物理学、化学、分光学、ナノ科学等、様々な領域で広く進展しつつある。ソリューションプラズマは、従来のプロセスと比較し短い時間で処理が可能なこと、常温・常圧プロセスであること、簡便な装置で利用が可能なこと、化学試薬の使用を最小限に抑制できることから、環境調和型材料プロセスとして期待されている。本研究では、無機材料であるマンガン酸化物及び有機材料である炭素系材料、さらに、これらのハイブリッド材料をソリューションプラズマにより合成を行い、有機色素除去の吸着剤特性、磁性ナノ粒子特性の評価を行った。

第一章では、ソリューションプラズマプロセスの基礎として、材料合成例、反応場の特色、実験装置の概要について述べた。

第二章では、材料・環境工学分野での応用が期待される二酸化マンガン ( $\text{MnO}_2$ ) を、ソリューションプラズマによる合成の検討を行った。 $\text{KMnO}_4$  水溶液において、プラズマ放電により界面活性剤、酸化還元剤等の化学試薬を用いることなく一段階合成を行い、シート状構造を有する安定なコロイド状  $\text{MnO}_2$  を合成した。さらに、合成したコロイド状  $\text{MnO}_2$  の安定性、構造、形態等の物理化学的特徴やその反応機構について議論した。異なる pH 条件 (pH 2、7 および 12) での  $\text{MnO}_2$  合成の結果から、 $\text{MnO}_4^-$  の  $\text{MnO}_2$  への還元反応において、溶液中の pH 及びプラズマ中で生成する水素ラジカルが重要な役割を果たし、その酸化状態が放電

時間に強く依存することを明らかにした。さらに、 $\text{KMnO}_4$  水溶液に、グルコース、フルクトース、スクロースの 3 種類の糖を添加し、ソリューションプラズマ処理を行うことにより、多孔質  $\text{MnO}_2$  の合成を試みた。従来の湿式化学プロセスと比較し、100 分の 1 以下の大幅な時間短縮が達成された。合成した多孔質  $\text{MnO}_2$  は、大きな表面積を有し、カチオン性有機色素の迅速な除去性能を示した。

第三章では、ソリューションプラズマによる炭素系材料の合成とその応用について検討した。有機溶液中のソリューションプラズマでは、C-H 活性化反応により、カーボンの重合体が合成できる。本博士論文では、有機溶媒であるベンゼンを使用し、ソリューションプラズマによりメソポーラスカーボンを合成した。さらに、電極を所定の金属電極に変更し、ソリューションプラズマスパッタリング法を用いることにより、メソポーラスカーボンに担持金属ナノ粒子 (Co、Ni、Fe) 及び金属ナノ粒子内包カーボン材料を合成し、それらの磁性特性を調べた。これらの金属ナノ粒子とカーボンのハイブリッド材料は、常磁性を有することを示した。

第四章では、ソリューションプラズマにより無機-有機ハイブリッド材料 ( $\text{MnO}_2$  とカーボン系材料のハイブリッド材料) を合成し、有機色素吸着剤としての性能評価を行った。一段階合成により、ハイブリッド材料を合成するため、ジシクロヘキサノ-18-クラウン-6 エーテルに  $\text{KMnO}_4$  を加え、それをベンゼンに混合させ、出発原料とした。クラウンエーテルは、親水性と疎水性の両方を有し、特にジシクロヘキサノ-18-クラウン-6 エーテルがカリウムイオン ( $\text{K}^+$ ) に対し、高い親和性を示すため  $\text{KMnO}_4$  をベンゼンに溶解させることができる。錯体形成により溶解した  $\text{MnO}_4^-$  を酸化マンガン源、ベンゼンを炭素源とする合成デザインのもと、ソリューションプラズマにより  $\text{MnO}_2$ -カーボンハイブリッド材料合成を実施した。合成されたハイブリッド材料の構造的、化学的特性とともに、カチオン及びアニオン性有機色素の吸着能力を検証した。その結果、本実験で合成したハイブリッド材料は、カチオン性有機色素に良好な除去性能を発現し、 $\text{MnO}_2$  を含有しないカーボン材料と比較して約 3 倍の高い吸着能力を示した。また、 $\text{MnO}_2$  のみの材料と比較し、繰返し安定性を試験では、再利用性が高いことを確認した。ハイブリッド構造を取ることで、各材料からの利点を相乗的に利用することを明らかにした。

第五章では、本研究の総括を示した。本研究では、ソリューションプラズマによる無機-有機ハイブリッド材料の合成と応用に関する展望をまとめた。ソリューションプラズマは単一材料の合成だけでなく、ハイブリッド材料の合成にも革新的で効果的な方法であり、高性能な吸着剤、磁性材料の開発プロセスとして応用できることを示した。