

学位論文の要旨

氏名	Muhammad Zobayer Bin Mukhlis
学位論文題目	Development of Flexible Ceramic Nanofiber Membranes for Energy and Environmental Applications (エネルギー及び環境応用のためのフレキシブル・セラミック ナノファイバ膜の開発)
<p>21世紀においてエネルギーと環境が重要な問題であるのは周知の事実であり、限りある石油資源と厳しい環境規制から、持続可能で環境に優しいエネルギー源の探索が必要である。また、汚染水を適切に処理し安全な水資源を確保することは喫緊の課題である。</p> <p>本論文は、エレクトロスピニング法（電界紡糸法）によるフレキシブル無機ナノファイバ膜の作製と、そのナノファイバ膜の色素増感太陽電池の熱耐性を持ったフレキシブル基板および汚染水からの色素除去への応用についてまとめたものである。</p> <p>第1章では、研究の背景と目的について述べている。エレクトロスピニング法の歴史と原理、基本パラメータについて述べたあと、色素増感太陽電池の構造・動作原理と現状での問題点、およびナノファイバ表面への色素吸着の原理について述べている。</p> <p>第2章は、ITO-シリカ複合ナノファイバ膜の作製とその色素増感太陽電池への応用について述べている。シリカ複合ナノファイバ膜にITOをコーティングする方法と、二重スピナレットを用いてITO-シリカ混合ナノファイバ膜を作製する方法を用い、フレキシブルで400°C以上の熱耐性を持つ自立型複合ナノファイバ膜の作製に成功し、15-113 Ω/sq のシート抵抗を得た。これらの膜を色素増感太陽電池の光作用極の軽量フレキシブル基板として応用できることを示し、その際の問題点を明らかにした。</p>	

第3章では、アルミナ・シリカナノファイバ膜の作製とその汚染水中の Reactive Red-120 (RR-120)色素除去への適用について述べている。エレクトロスピニング法を用いて作製したナノファイバ膜をTG-DSC, FE-SEM, EDX, XRD, ラマンスペクトルで調べた結果、無配向で連続的な直径約95 nmのフレキシブルアモルファスナノファイバから構成されていることが分かった。RR-120 色素除去の一連の実験を pH, 吸着剤の量, 吸着時間を変化させながら行った。吸着平衡状態と動的特性を調べた結果、吸着プロセスは pH に依存し、ラングミュア等温モデルで表されることを示した。最大吸着密度は 884.95 mg/g と大きかった。フレキシブルで自立膜の吸着剤であるため、吸着後も容易に溶液から取り出すことができた。さらに、色素を遊離させることで吸着剤として再利用することができるため、汚染水から色素を分離させるための吸着剤として実用化できる可能性があることを示すことができた。

第4章では、前章のアルミナ・シリカナノファイバを $\alpha\text{-Fe}_3\text{O}_4$ で覆ったコア・シース型のナノファイバ膜の作製と、吸着特性の向上について述べた。エレクトロスピニング法で多孔質のネット状構造を持つコア・シース型のナノファイバ膜ができていることが確認された。吸着特性を前章のアルミナ・シリカナノファイバと同様の方法で調べたところ、RR-120 色素の1860.81 mg/g の最大吸着密度を持ち、これまで他の文献で報告されているものの中で最も大きいことが分かった。さらに、吸着した色素のほとんどを遊離させることができることから吸着剤として再利用でき、RR-120 色素の吸着剤として実用化可能であることを示した。

第5章では、各章の結果を総括し、今後のナノファイバ膜の発展について論じた。

Summary of Doctoral Dissertation

Title of Doctoral Dissertation:

Development of Flexible Ceramic Nanofiber Membranes for Energy and Environmental Applications

Name: Muhammad Zobayer Bin Mukhlis

It is now well-known fact that energy production and environmental challenges constitute dominant issues for the 21st century. Consequently, limited fossil fuel resources and strict environmental regulations induce the search for sustainable, efficient and environmentally friendly energy sources. On the other hand, acute problems related to treatment of hazardous reactive dye contaminated water have emerged as an international priority.

The current PhD research is focused and aimed on the fabrication of flexible inorganic nanofiber (NF) membranes by electrospinning method, and their successful application to flexible and heat-resistive NF substrate in dye-sensitized solar cells (DSSCs) and adsorptive removal of dye contamination from water.

Chapter 1 consists of a general feature introduction of the entire studies. At first, the background and objectives of the studies have been discussed. After that, the history, principle, basic parameters and application of electrospinning technique have been described. Finally, the structure of DSSC as well as research trend on its different parts, working principle of DSSC, and basic principle of adsorption method have been illustrated for the adsorptive removal of dye.

Chapter 2 deals with the fabrication of ITO-silica complex NF mats and their application in DSSC. –Two approaches were applied to make the ITO-silica NF mats: electrospun silica-NF mats drop coated by ITO and hybrid mats composed of ITO NF and silica NF fabricated by the dual-spinneret electrospinning technique. The self-standing ITO-silica NF mats with excellent flexibility and thermal durability (>400 °C) was successfully fabricated with the sheet resistance of 15-113 Ω /sq. The ITO-silica NF mats were successfully applied to the as thermally stable light-weight substrates to produce working electrodes of DSSCs, and the problems in the existing

application were highlighted.

Chapter 3 deals with the fabrication of nonwoven membrane of ultrafine alumina-silica NFs and its high adaptability for the removal of Reactive Red-120 (RR-120) dye pollutant from aqueous solution. We have successfully prepared the NF membrane by electrospinning, and also characterized the membrane by using by TG-DSC, FE-SEM, EDX, XRD and Raman spectroscopy. The membrane, consisting of continuous and randomly arranged NFs with an average diameter of ~ 95 nm, was self-standing, amorphous, and mechanically flexible. Batch experiments for the removal of RR-120 dye from aqueous solution were carried out changing pH, adsorbent dosage and contact time. Adsorption equilibrium and kinetic studies were also carried out. The sorption process was pH dependent and followed the Langmuir isotherm model. The maximum adsorption capacity of the NF membrane for RR-120 dye was observed as high as 884.95 mg/g. After adsorption, the membrane could be separated from the liquid phase conveniently due to its flexible and self-standing nature. Moreover, most of the dye could be recovered from the dye-loaded membrane and the NF membrane could be reused as adsorbent. Consequently, this membrane can be a practically applicable promising adsorbent material for removal and recovery of dye from aqueous solution.

Chapter 4 illustrates the preparation of alumina-silica/ α -Fe₃O₄ core-sheath nanofiber membranes and their enhanced adsorption performance. The core-sheath nanofiber membrane with a net-like porous structure was successfully prepared by electrospinning method. The sorption characteristics of RR-120 dye from aqueous solution was investigated as the same manner with alumina-silica NF membranes. The equilibrium study revealed that one of the alumina-silica/iron oxide NF membranes had a maximum RR-120 dye sorption capacity of 1860.81 mg/g, and this was the highest adsorption capacity for RR-120 exhibited by an adsorbent ever reported in the literature. Moreover, most of the dyes could be recovered from the dye-loaded membrane after adsorption and the membrane could be reused as adsorbent. Thus, the alumina-silica/iron oxide NFs membrane is a practically applicable potential adsorbent for the removal of RR-120 dye.

Chapter 5 consists of brief summary of each chapter in the dissertation and the prospective development in the applications of nanofibrous membranes.