

Title	Design of Highly Efficient Metal Nanoparticle Catalysts for Chemoselective Hydrogenation Reactions
Author(s)	高橋, 佑輔
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/34515">https://hdl.handle.net/11094/34515</a>
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## 論文内容の要旨

氏 名 ( 高 橋 佑 輔 )	
論文題名	<b>Design of Highly Efficient Metal Nanoparticle Catalysts for Chemoselective Hydrogenation Reactions</b> (化学選択的水素化反応を進行させる高機能金属ナノ粒子触媒の設計)
論文内容の要旨	
<p>環境問題が深刻化する現在、高機能な触媒の開発はエネルギーや資源の消費、廃棄物の副生を抑えた環境調和型物質生産プロセスの実現に大きく貢献する。固体触媒は回収や再使用が容易であり流通系の反応にも適用できる反面、活性点である表面構造の均一制御が難しく、特に液相系での官能基選択的な物質変換には適さなかった。そこで申請者は、触媒活性種の構造および性質を原子レベルで精密に設計制御することで、従来にない新しい機能を持った固体触媒の開発に成功した。</p> <p>第一章では有機化合物の水素化反応系に焦点を当て、これまで開発されてきた官能基選択的水素化反応とその手法について概説した。またこれらの課題を指摘し、その解決手段として三つのアプローチによる新規触媒設計指針をまとめた。</p> <p>第二章ではアルキンを選択的にアルケンへと水素化するコア-シェル型部分水素化触媒の設計について記述した。本触媒はシェルに含まれる配位子がPdナノ粒子へ配位し、より配位力の弱いアルケンのPdへの配位を阻害する。すなわちPd触媒表面への基質の配位を制御し、より配位力の強いアルキンだけを選択的に水素化する固体表面触媒反応場の精密設計に成功した。</p> <p>第三章ではアルデヒドとケトンの共存下、反応性の低いケトンを選択的に水素化する触媒反応系の開発について述べた。固体酸と担持金属ナノ粒子を同時に用いることにより、アルコール、水素、水の逐次添加により廃棄物を出さず、高選択的にケトンだけを水素化でき、さらに流通反応にも適用可能な環境調和型物質変換プロセスの開発に成功した。</p> <p>第四章では活性種と担体の特異な協奏効果の創出により触媒の活性を飛躍的に高め、温和な条件下でのスルホキシドの脱酸素反応を達成した。表面吸着能の高いヒドロキシアパタイトを担体に用いたRuナノ粒子触媒が、アルコールを還元剤としたスルホキシドの脱酸素反応を特異的に進行させることを見出した。</p> <p>最終章では、これらの触媒設計法について総括し、学術的な意義について言及した。またコア-シェル構造により基質特異的な反応場を構築した水素化触媒の今後の展開についてまとめ結言とした。</p>	

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 高 橋 佑 輔 )	
	(職) 氏 名
論文審査担当者	主 査 教 授 實川 浩一郎
	副 査 教 授 平井 隆之
	副 査 教 授 西山 憲和
	副 査 准教授 水垣 共雄

## 論文審査の結果の要旨

本論文は触媒活性種の構造および性質を原子レベルで精密に設計制御することで、従来にない新しい機能を持った環境調和型物質生産プロセスに適用できる固体触媒の開発について述べたものである。

第一章では有機化合物の水素化反応系に焦点を当て、これまで開発されてきた官能基選択的水素化反応とその手法について概説した。特に、液相での官能基選択性の制御が困難であった従来の固体触媒の問題点を指摘し、その解決手段として三つのアプローチによる新規触媒設計指針をまとめた。

第二章ではアルキンを選択的にアルケンへと水素化するコア-シェル型部分水素化触媒の設計について記述した。本触媒はシェルに含まれる配位子がPdナノ粒子へ配位し、より配位力の弱いアルケンのPdへの配位を阻害する知見に基づき、Pd触媒表面への基質の配位を制御し、より配位力の強いアルキンだけを選択的に水素化する、固体表面触媒反応場の精密設計に成功した。

第三章ではアルデヒドとケトンの共存下、反応性の低いケトンを選択的に水素化する触媒反応系の開発について述べた。固体酸と担持金属ナノ粒子を同時に用いることにより、アルコール、水素、水の逐次添加により廃棄物を出さず、高選択的にケトンだけを水素化でき、さらに流通反応にも適用可能な環境調和型物質変換プロセスの開発に成功した。

第四章では活性種と担体の特異な協奏効果の創出により触媒の活性を飛躍的に高め、温和な条件下でのスルホキシドの脱酸素反応を達成した。表面吸着能の高いヒドロキシアパタイトを担体に用いたRuナノ粒子触媒が、アルコールを還元剤としたスルホキシドの脱酸素反応を特異的に進行させることを見出した。

最終章では、これらの触媒設計法について総括し、学術的な意義について言及した。またコア-シェル構造により基質特異的な反応場を構築した水素化触媒の今後の展開についてまとめ結言とした。

以上、選択的な水素化反応を達成できる新規触媒システムを設計し、環境調和型反応を開発した本論文は、博士(工学)の学位論文として価値のあるものと認める。