



Title	Synthesis of Structurally Designed Metal-Carbon Nanocomposites and Their Catalytic Properties
Author(s)	原田, 隆史
Citation	大阪大学, 2008, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/49645
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【57】				
氏 名	はら	だ	たか	し
	原	田	隆	史
博士の専攻分野の名称	博 士（工 学）			
学 位 記 番 号	第 2 2 5 3 8 号			
学 位 授 与 年 月 日	平 成 20 年 9 月 25 日			
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第2項該当			
学 位 論 文 名	Synthesis of Structurally Designed Metal-Carbon Nanocomposites and Their Catalytic Properties (構造を制御した金属-炭素複合体の調製とその触媒特性)			
論 文 審 査 委 員	(主査)			
	教 授 松村 道雄			
	(副査)			
	教 授 實川浩一郎	教 授 福井 賢一	准教授 池田 茂	

論 文 内 容 の 要 旨

固体触媒は石油化学工業や基礎化成品製造において広く用いられているが、近年、環境負荷の低減の観点から他の分野でも注目を集めている。固体触媒のなかで、炭素材料に担持した金属触媒は液相反応で多く用いられており、安定でかつ高い再利用性を示し、炭素材料を燃焼することにより金属を回収できるといった利点を持つ。触媒活性は担持される金属のサイズや形状、担持状態に大きく依存するため、高活性な炭素担持金属触媒を得るためには新たな担持技術や炭素材料の開発が重要である。このような背景のもと、本論文は、担持される金属または炭素材料の構造を制御することによる高活性な金属-炭素複合体の調製とその触媒特性について記述したものである。

金属-炭素複合体の調製には次の異なる二つのアプローチを試みた。

- 1) 担持条件を変えることによる炭素担体上へ担持される金属のサイズ、分散性の制御
- 2) サイズのそろった金属ナノ粒子を出発原料とする新奇なコア-シェル構造体の調製

第一章では、研究背景として固体触媒の利点、固体触媒を構成する担体や金属粒子についての近年の動向と、本研究の意義・目的を記述した。

第二章では、アルカリ条件下での液相還元法による炭素担体上へのパラジウム粒子の固定化について記述した。適量の水酸化ナトリウム (NaOH) を加えることで、析出するパラジウム粒子のサイズと分散性が制御できることを見出した。透過型電子顕微鏡 (TEM) や分光法を用いてNaOH量によるパラジウム粒子の析出挙動を明らかにした。酸化反応、水素化反応により触媒活性を評価したところ、サイズや分散性に依存した活性の向上を示すことを見出した。

第三章では、ポリマーで保護された白金ナノ粒子を出発原料とし、テンプレート法を用いて炭素シェルに白金ナノ粒子を内包させた新奇なコア-シェル構造体の調製について記述した。TEM、X線光電子分光 (XPS) 等の分析により、内包される金属は保護剤を持たない「裸」の状態で、多孔性の中空炭素シェルに内包されていることを明らかにした。本触媒が水素化反応や還元アルキル化反応に対し非常に高い活性と再利用性を示すことを見出した。

第四章では、第三章の白金をロジウムに変えたコア-シェル構造体の調製について記述した。第三章のコア-シェル構造体のコンセプトが他の金属にも応用できることを明らかにした。得られた触媒を用いて芳香環の水素化反応を行ったところ、炭素シェルへの基質の濃縮効果により水を溶媒としたときに非常に高い活性を示すことを見出した。

最後に以上の結果を総括し、新奇コア-シェル構造体について今後の展望を記述した。

論文審査の結果の要旨

炭素材料に担持させた金属触媒は広く工業的に利用されている。また、このような固体触媒は環境負荷の低減の観点からも様々な分野で注目されている。固体触媒の活性は担持した金属の粒径や分散性に大きく起因するため、これらの制御が非常に重要である。本論文は、金属担持条件の検討や、新たな調製方法の開発により金属または炭素材料の構造を制御した金属-炭素複合体の調製と、その触媒特性についての研究成果をまとめたもので、四章により構成されている。

第一章では、研究の背景および目的について詳述している。

第二章では、種々の炭素担体上へのアルカリ条件下でのパラジウム粒子の析出挙動について述べている。炭素担体上に金属を固定化するときに、水酸化ナトリウムを加えるという簡便な手法により、析出するパラジウム粒子のサイズ・分散性が制御できることを見出し、サイズに依存して触媒活性が向上することを確認している。

第三章では、白金ナノ粒子を中空状の炭素シェルに内包させた新奇なコア-シェル構造体の調製について述べている。炭素シェルに内包させることで、保護剤なしでも安定化した白金ナノ粒子の調製に成功している。また、この触媒が水素化反応などに非常に高い活性と再利用性を示すことを見出している。

第四章では、第三章の白金をロジウムに変えて同様のコア-シェル構造体の調製を行い、コア-シェル構造の概念が他の金属にも応用できることを明らかにしている。また、この触媒が炭素シェルの疎水性により、水を溶媒に用いた時に芳香族類の水素化反応に高い活性を示すこと、700℃においても内包するロジウムナノ粒子の凝集が抑制できることを明らかにした。

最後に論文全体の結果を総括し、コア-シェル構造体についての今後の展望について記している。

第二章に記された内容は、申請者が開発した、ナノサイズのパラジウム粒子の粒径・分散性を制御するための、新たな手法に関するものである。その方法は簡便であり、今後広く応用されると期待される。第三章、第四章に記された内容も、申請者が開発した手法で、貴金属ナノ粒子を炭素シェルで取り囲んだコア-シェル構造の作製法に関するものである。この構造により、これまで安定化が困難であったナノ粒子を、表面処理を施さずに安定化することに成功している。さらに、そのような構造から、高い触媒活性が発現することを確認しており、応用的な展開が期待される。これらの成果は、金属触媒の分野における新たな研究の方向性を示したものとして、学術的にも高く評価されるものであり、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。