

Title	Development of Skeletal Metal Catalyst Prepared from Amorphous Alloy
Author(s)	野崎, 安衣
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/55953
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"〉 大阪大学の博士論文について 〈/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 (野 崎 安 衣)

論文題名

Development of Skeletal Metal Catalyst Prepared from Amorphous Alloy
(アモルファス合金を前駆体とする多孔質金属触媒の開発)

論文内容の要旨

本論文では、優れた金属触媒の開発を目的とし、アモルファス合金に化学処理を施すことで多孔質金属触媒の作製を行うとともに、前駆体合金の原子配列、化学組成、構成元素や化学処理条件が触媒特性に与える影響について調査した。

第1章では、本研究の背景、目的および各章の概要を述べた。

第2章では、Ni-Zr アモルファス合金に様々な温度で熱処理を施すことで、状態の異なる Ni-Zr 合金を調製した。それらを HF 溶液で処理し、選択的に Zr を抽出することで得た多孔質 Ni の触媒作用と表面状態との関連について検討した。作製した多孔質 Ni の触媒作用について 1-オクテンの水素化反応を用い比較検討したところ、多孔質 Ni 触媒の活性は前駆体の状態に強く影響を受け、Ni-Zr アモルファス合金に結晶化温度付近の熱処理を施すことで触媒活性が向上することを見出した。

第3章では、前駆体である Ni-Zr 合金の組成比が多孔質 Ni の触媒特性に与える影響について調査し、前駆体の Zr 組成比が大きいほど得られた多孔質 Ni が高い触媒活性を示すことを見出した。

第4章では、多孔質 Ni への加熱処理中の雰囲気ガス制御を行い、調製した試料の表面状態と触媒作用との関連について調査した。作製した試料について、触媒活性を比較検討したところ、酸素処理を 423 K で施すことで、水素処理のみを施した試料よりも触媒活性が 2.5 倍向上することを見出した。

第5章では、Cu-Ti アモルファス合金に様々な温度で熱処理を施し作製した結晶度の異なる試料に、HF 処理を行うことで多孔質 Cu を調製した。調製した多孔質 Cu を用いてアンモニアボランの分解反応を行なったところ、触媒活性は前駆体である Cu-Ti 合金の状態に強く影響を受け、Cu-Ti 合金に結晶化温度よりもわずかに低温で熱処理を施すと触媒活性が向上することが明らかとなった。

第6章では、前駆体である Cu-Ti 合金の組成比や原子配列が多孔質 Cu の触媒特性に与える影響について調査した。前駆体組成比に依らず、Cu-Ti 合金に結晶化温度よりもわずかに低温で熱処理を施すと触媒活性が向上した。

第7章では、貴金属である Pd 使用量削減を目的とし、Pd-Zr アモルファス合金に第三元素として Ni を添加した Pd-Ni-Zr 合金から多孔質 Pd-Ni を調製したところ、Ni を添加することで触媒活性やオクタン選択性が向上するということを見出した。

第8章では、Au-Zr アモルファス合金に様々な浸漬時間で HF 処理を施し Zr 残存量の異なる多孔質 Au を調製した。多孔質 Au 上でベンジルアルコールの酸化反応を行なったところ、Zr が表面に多く残存するほど触媒活性が高いことがわかった。前駆体合金の原子配列に注目し、アモルファス合金、結晶合金それぞれから調製した多孔質 Au の触媒特性について比較検討したところ、表面積や表面 Au/Zr 組成比がほぼ同じ多孔質 Au であってもアモルファス合金から調製した多孔質 Au の方が優れた触媒特性を示すことを見出した。

第9章では、本論文の総括を行った。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (野 崎 安 衣)			
論文審査担当者	(職)	氏 名	
	主 査	教授	山下 弘巳
	副 査	教授	藤本 慎司
	副 査	教授	安田 弘行

論文審査の結果の要旨

本論文では、優れた金属触媒の開発を目的とし、アモルファス合金に化学処理を施すことで多孔質金属触媒の作製を行うとともに、前駆体合金の原子配列、化学組成、構成元素や化学処理条件が触媒特性に与える影響について検討している。

本論文は以下のように要約される。

(1) Ni-Zr アモルファス合金に様々な温度で熱処理を施すことで、異なる原子配列を有する Ni-Zr 合金を調製し、化学処理を施すことで Zr を選択的に溶出して調製した多孔質 Ni のオクテンの水素化反応における触媒作用と表面状態との関連を検討している。作製した多孔質 Ni の触媒作用について比較検討したところ、多孔質 Ni 触媒の活性は前駆体の状態に強く影響を受け、Ni-Zr アモルファス合金に結晶化温度付近の熱処理を施すことで触媒活性が向上することを見出している。

(2) Ni-Zr アモルファス合金の化学組成が触媒特性に与える影響について検討している。組成比の異なる Ni-Zr アモルファス合金から調製した多孔質 Ni の触媒活性は、前駆体の Zr 組成比が多いほどアンモニアボランの分解反応において高い触媒活性を示すことを明らかにしている。中でも結晶化温度付近の熱処理を施した Ni₃₀Zr₇₀ 合金から調製した多孔質 Ni 触媒は、工業的に利用されているラネー-Ni 触媒よりも優れた触媒活性を示すことを見出している。

(3) 前駆体として Cu-Ti アモルファス合金を作製し、前駆体の構成元素が触媒特性に与える影響について検討している。前駆体の構成元素に依らず触媒活性は前駆体合金の原子配列に強く影響を受け、前駆体アモルファス合金に結晶化温度よりもわずかに低温で熱処理を施すとアンモニアボラン分解反応において触媒活性が向上することを明らかにしている。

(4) 貴金属である Pd 使用量削減を目的とし、Pd-Zr アモルファス合金に第三元素として Ni を添加した Pd-Ni-Zr 合金から Zr 抽出により多孔質 Pd-Ni を調製したところ、Ni を添加することでオクテンの水素化反応において触媒活性・オクタン選択性が向上することを見出している。

(5) 作製した多孔質金属触媒に残存する Zr が触媒特性に与える影響について検討している。Au-Zr アモルファス合金を出発原料とし、様々な浸漬時間で HF 処理を施し Zr 残存量の異なる多孔質 Au のベンジルアルコール酸化反応における触媒特性について評価したところ、Zr が表面に多く残存するほど触媒活性が高いことを見出している。多孔質 Au 上に高分散に ZrO₂ が存在し、活性サイトである Au-ZrO₂ 接合界面周縁部が多く存在することで触媒活性向上につながっていることを明らかにしている。

以上のように、本論文はアモルファス合金を触媒前駆体として用いることで触媒性能の向上に成功しており、材料工学分野の基礎・応用面に大きく貢献する研究内容である。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。