The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Design of Highly-ordered Metal Nanoparticles and Catalytic Applications for Green Chemical Reactions
Author(s)	福, 康二郎
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/59898
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

【132】

氏　　名	福　　康二郎（ふく　こう じ ろう）
博士の専攻分野の名称	博　士（工学）
学 位 記 番 号	第　２６１９８　号
学位授与年月日	平成 25 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第４条第１項該当 工学研究科マテリアル生産科学専攻
学 位 論 文 名	Design of Highly-ordered Metal Nanoparticles and Catalytic Applications for Green Chemical Reactions 高次制御された金属ナノ粒子の設計とグリーン・ケミカル触媒反応への応用
論 文 審 査 委 員	（主査） 教　授　山下　弘巳 （副査） 教　授　田中　敏宏　　教　授　藤本　愼司

論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、高効率な触媒および光触媒反応に応用可能な金属ナノ粒子の設計を目的とし、マイクロ波誘導加熱やシングルサイト光触媒を利用した新規な高次制御法を創製するとともに、種々のグリーン・ケミカルな触媒反応への応用を検討した。

第１章では、研究背景、研究目的、および論文の構成について述べた。

第２章では、アンモニアの分解無害化と水素エネルギーの回収に利用可能な高性能Pt-TiO_2光触媒の調製について検討した。マイクロ波の急速・均一加熱を用いることで、TiO_2上での微粒子かつ高分散なPtナノ粒子の調製に成功し、従来法で調製した同触媒よりも効率的なアンモニア分解活性を示しながら、高い水素製造能を有していることが明らかとなった。

第３章では、特異な触媒性能を示すCuナノ粒子の新規なサイズ制御法として、表面配位子を利用したマイクロ波加熱プロセスを検討したところ、表面配位子の炭素鎖長の違いによって、そのサイズを自由に制御できることを明らかにした。Cuナノ粒子のサイズに応じて水素化反応に対する触媒活性も大きく異なり、反応条件に応じたサイズを有するCuナノ粒子の創製が可能になった。

第４章では、局在表面プラズモン共鳴（LSPR）による表面電荷密度の増大を利用した触媒性能の向上を目指して、Agナノ粒子のサイズ・色彩制御を検討した。マイクロ波加熱とメソポーラスシリカのメソ細孔構造を活用することにより、サイズ・形状制御が達成され、それに由来した色彩制御も同時に可能となった。アンモニアボランからの水素製造において、Ag-LSPR誘起促進効果による触媒性能の向上が確認され、反応に応じたサイズと光環境に応じた色彩を有するAgナノ粒子を設計することで、より効率的な触媒反応への応用が達成された。

第５章では、有害な気相メタノールの分解に有用なPt触媒の開発を検討した。CeO_2/ZSM-5をPtナノ粒子の担体として利用したPt/CeO_2/ZSM-5複合触媒を設計することで、Pt-CeO_2間の強い相互作用によるPtの微粒子化と、ZSM-5ゼオライトの有機物吸着濃縮効果による相乗効果が発現し、メタノールの気相分解反応に対して、温和な条件下で高い触媒性能を示した。

第６章では、第５章で設計したPt/CeO_2/ZSM-5複合触媒を用いて、揮発性有機化合物（VOC）の酸化分解反応への応用を検討した。アセトアルデヒドの酸化分解において、Ptの微粒子効果とZSM-5の吸着濃縮効果の相乗効果が発現することで、より高い触媒性能が発揮され、CeO_2とZSM-5量のバランスが効率的酸化分解反応に重要な因子であることが明らかとなった。

第７章では、孤立高分散なTi種を含有したメソポーラスシリカの光触媒作用を利用した光析出法（PAD）によって、微粒子なPd-Ni合金ナノ粒子の調製が可能になることを見出した。本方法で調製したPd-Ni合金ナノ粒子は、水素化反応に対して特異的に高い性能を示すことが明らかとなり、従来触媒を凌駕する水素化性能を有する合金ナノ粒子触媒の設計に成功した。

最後に第８章において、論文を総括した。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は、高効率な触媒および光触媒反応に応用可能な金属ナノ粒子の設計を目的として、マイクロ波誘導加熱やシングルサイト光触媒、酸化物の複合担体を利用した新規な高次制御法を創製するとともに、種々のグリーン・ケミカルな触媒反応への応用を行っている。

本論文は、以下のように要約される。

（1）アンモニアの分解無害化と水素エネルギーの回収に利用可能な高性能 Pt-TiO_2 光触媒の調製について検討している。マイクロ波の急速・均一加熱を用いることで、TiO_2 上での微細かつ高分散な Pt ナノ粒子の調製に成功しており、従来法で調製した同触媒よりも効率的なアンモニア分解活性を示しながら、高い水素製造能を有していることを明らかにしている。

（2）特異な触媒性能を示す Cu ナノ粒子の新規なサイズ制御法として、表面配位子を利用したマイクロ波加熱プロセスを検討しており、表面配位子の炭素鎖長の違いによって、そのサイズを自由に制御できることを明らかにしている。Cu ナノ粒子のサイズに応じて水素化反応に対する触媒活性も大きく異なり、反応条件に応じたサイズを有する Cu ナノ粒子の創製を実現している。

（3）局在表面プラズモン共鳴（LSPR）による表面電荷密度の増大を利用した触媒性能の向上を目指して、Ag ナノ粒子のサイズ・色彩制御を検討している。マイクロ波加熱とメソポーラスシリカのメソ細孔構造を活用することにより、サイズ・形状制御が達成され、それに由来した色彩制御も実現している。アンモニアボランからの水素製造において、Ag-LSPR 誘起促進効果による触媒性能の向上が確認され、反応に応じたサイズと光環境に応じた色彩を有する Ag ナノ粒子を設計することで、より効率的な触媒反応が達成されている。

（4）揮発性有機化合物（VOC）の分解に有用な Pt 触媒の開発を検討している。CeO_2/ゼオライト（ZSM-5）を Pt ナノ粒子の担体として利用した Pt/CeO_2/ZSM-5 複合触媒を設計することで、Pt-CeO_2 間の相互作用による Pt の微粒子化と、ZSM-5 の有機物濃縮効果による相乗効果が発現し、温和な条件下での高効率な VOC 分解に成功している。

（5）孤立高分散な Ti 種を含有したシングルサイト光触媒と光析出法を組み合わせることで、微細な Pd-Ni 合金ナノ粒子の調製が可能になることを見出している。水素化反応に対して特異的に高い性能を示すことを明らかにしており、従来触媒を凌駕する水素化性能を有する合金ナノ粒子触媒の設計に成功している。

以上のように、本論文は、金属ナノ粒子触媒の新規高次制御法の開発と、高効率な触媒反応への応用を実現しており、材料工学分野の基礎・応用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。