T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	デンドリマーを鋳型とした特定原子数金属クラスターの精密合成と機能
Title(English)	Precise Synthesis and Functions of Metal Clusters Consisting of Specific Atomicity Using Dendrimers as a Template
著者(和文)	北澤啓和
Author(English)	Hirokazu Kitazawa
出典(和文)	学位:博士（理学）, 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9738号, 授与年月日:2015年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山元　公寿,穐田　宗隆,藤井　正明,今岡　享稔,竹内　大介
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9738号, Conferred date:2015/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

（博士課程）

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第　　号		学位申請者氏名	北澤　啓和	
論文審査 審 査 員		氏　名	職　名	氏　名	職　名
	主査	山元　公寿	教授	竹内　大介	准教授
	審査員	穐田　宗隆	教授		
		藤井　正明	教授		
		今岡　享稔	准教授		

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文では、「デンドリマーを鋳型とした特定原子数金属クラスターの精密合成と機能」と題して、フェニルアゾメチン骨格のデンドリマー(DPA)を鋳型として原子数制御された金属クラスターの合成とその機能についてまとめられており、6 章から構成されている。

第 1 章「デンドリマーの機能と金属クラスターの機能」では、ナノ先端材料の中で注目されている材料の一つのデンドリマーや金属クラスターの機能について概説している。さらに、デンドリマーをクラスター合成の鋳型として用いる有用性ならびに、金属クラスターの原子数制御の重要性について示し、本研究の意義を述べている。

第 2 章「フェニルアゾメチンデンドリマー (DPA) の合成と金属集積」では、クラスター合成の鋳型となるテトラフェニルメタンをコアとするフェニルアゾメチンデンドリマー (TPM) を合成し、TPM への種々の金属塩の精密金属集積を実施している。UV-Vis タイトレーションによる解析により、集積金属原子数の精密な制御が可能である事を確認している。更に、新たな金属種として Pd 塩の 1:1 の放射状段階的錯形成を見いだし、Pd クラスター合成の鋳型となりうることを明らかにしている。

第 3 章「魔法数クラスターを目指した新規デンドリマーの合成と金属集積」では、13 原子の魔法数金属クラスターの合成を目指し、従来の TPM のコアに新たに 1 つの配位サイトを導入した新規 PyTPM を設計し合成している。錯形成挙動の解析から、PyTPM が 13 原子で構成された魔法数金属クラスターの鋳型となりうることを明らかにしている。

第 4 章「サブナノ貴金属クラスターの精密合成と構造」では、TPM G4（4 世代）と PyTPM G4 を鋳型として用いる事により、それぞれ 12 原子の白金クラスター(Pt_{12})と魔法数 Pt_{13} クラスターを合成し、わずか 1 原子の違いのクラスターのつくり分けに成功している。ESI-TOF-MS 及び XAFS 測定により、魔法数 Pt_{13} クラスターの icosahedral 構造を明らかにしている。また、金属種を拡張し、サブナノ Pd クラスター（Pd_{12}, Pd_{28}, Pd_{60}）の合成も達成している。

第 5 章「サブナノ貴金属クラスターの触媒機能」では、Pt_{12} と Pt_{13} の酸素還元触媒活性を評価し、2 倍以上の差があることを突き止めている。12〜20 原子の Pt クラスターを合成し、1 原子毎の酸素還元触媒活性をあきらかにして、サブナノ領域の粒子では原子数毎の触媒活性の評価が必要であるとの重要な結論を得ている。さらにサイズ制御した Pd クラスターについて鈴木カップリング反応の触媒機能を評価し、その有用性も明らかしている。

第 6 章「総括」では、本研究の研究成果をまとめ、今後の展望について述べている。

以上を要するに、本論文はフェニルアゾメチンデンドリマーの精密金属集積を利用し、原子数制御された精密サブナノクラスタ−の合成法を確立、原子数毎の触媒機能の解明をまとめたものである。これらの成果は、ナノ材料や触媒材料などへ波及する事はもとより、錯体化学、機能材料化学の進展に寄与し、理学上貢献するところが大きい。したがって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分な価値があるものと認められる。