

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	精密サブナノ粒子の触媒機能の開発
Title(English)	
著者(和文)	高橋正樹
Author(English)	Masaki Takahashi
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9739号, 授与年月日:2015年3月26日, 学位の種類:課程博士, 審査員:山元 公寿,小坂田 耕太郎,中村 浩之,今岡 享稔,吉沢 道人
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9739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

(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	高橋 正樹		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	山元 公寿	教授	審査員	今岡 享稔	准教授
	審査員	小坂田 耕太郎	教授			
		中村 浩之	教授			
		吉沢 道人	准教授			

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文では、「精密サブナノ粒子の触媒機能の開発」と題して、フェニルアゾメチン骨格の dendrimer (DPA) を鋳型として精密サブナノ粒子の合成とその触媒機能の開発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「Dendrimer とサブナノ粒子の機能と構造」ではナノ粒子の一般的な合成法を紹介している。特にサブナノサイズの粒子に着目して、ナノサイズの粒子と異なる触媒活性を示す例を解説している。あわせて、従来までの dendrimer をテンプレートとしたナノ粒子触媒の合成例も紹介している。

第 2 章「白金サブナノ粒子のテンプレート合成」では DPA の合成と DPA 特有の金属塩の段階的錯形成能を述べている。この dendrimer をテンプレートとして利用し、白金サブナノ粒子を精密に合成している。得られたサブナノ粒子を安定に触媒として用いるため、担体への担持を検討した結果、DPA と同様の疎水性のメソポーラスカーボン (GMC) 担体を用いて溶液中で安定に白金サブナノ粒子を保持させる事に成功している。

第 3 章「白金サブナノ粒子の水素添加触媒能」では代表的な還元反応である不飽和有機化合物の白金水素添加反応における白金サブナノ粒子の触媒活性について述べている。オレフィンの水素添加反応において白金サブナノ粒子の非常に高い触媒活性を明らかにしている。更に、これまでアルキルアミン等の被毒が報告されている反応に於いても、白金サブナノ粒子触媒を用いる事により触媒活性を失うことなく還元的アミノ化反応を進行させることに成功している。

第 4 章「白金サブナノ粒子のアルコール酸化反応」では、代表的な酸化反応であるアルコールの酸化における白金サブナノ粒子の触媒活性について述べている。Pt<sub>12</sub>, Pt<sub>28</sub>, Pt<sub>60</sub> と数ナノメートルの大きさの市販白金ナノ粒子を用いて触媒能を検討している。60 原子のナノ粒子が最も高い触媒活性を示す事を明らかにしている。

第 5 章「合金サブナノ粒子による炭化水素の空気酸化反応」では、工業的にも極めて重要な空気酸化反応における他の金属と合金化した白金サブナノ粒子の触媒活性について述べている。炭化水素のベンジル位の C-H 結合の気体酸素による酸化反応において、白金と銅からなる合金サブナノ粒子が非常に高い触媒活性を示すことを見出している。更に、反応機構を推定し、金を添加した金-銅-白金の 3 元合金サブナノ粒子を触媒として用いる事により、従来よりも低温でしかも高い活性で酸化反応を進行させる事に成功している。

第 6 章「総括」では、本研究の研究成果をまとめ、総括している。

以上を要するに、本論文はフェニルアゾメチン dendrimer の精密金属集積を利用し、精密なサブナノ粒子を合成し、酸化、還元反応の触媒機能の解明についてまとめたものである。これらの成果は、ナノ材料や機能材料などへ波及する事はもとより、有機化学、錯体化学、触媒化学の進展に寄与し、理化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。