

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	マイクロ波によってナノメートルサイズで誘起される局所高温場の理解と触媒反応系への応用
Title(English)	
著者(和文)	阿野大史
Author(English)	Taishi Ano
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11466号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:和田 雄二,一杉 太郎,多湖 輝興,山中 一郎,本倉 健
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11466号, Conferred date:2020/3/26, 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

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	阿野 大史	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	和田 雄二	教授	本倉 健	准教授
	審査員	一杉 太郎	教授		
		多湖 輝興	教授		
山中 一郎		教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本博士論文は、「マイクロ波によってナノメートルサイズで誘起される局所高温場の理解と触媒反応系への応用」と題し、以下の7章から構成されている。

第1章「序論」では、マイクロ波化学プロセスの実証例と研究状況が概説され、マイクロ波の物質選択加熱に基づく局所高温場の形成と触媒反応の促進効果についての報告例が詳細に記述され、本論文の目的と学術的意義が提示されている。本博士論文で扱うナノ構造体触媒や担持金属ナノ粒子触媒にマイクロ波照射下で誘起されるナノメートルサイズの局所高温場の理解の重要性が記述されている。

第2章「分子温度計を利用したマイクロ波加熱下その場ナノ温度測定」では、固液分散系におけるナノ構造体触媒にマイクロ波照射下で発生する局所高温場の温度理解を目的とし、分子温度計を導入した層状タングステン酸塩の合成およびマイクロ波加熱下における層間ナノ温度測定が行われている。層間ナノ温度が周囲の溶媒温度よりも最大で5℃高温であり、局所高温場の存在が実証されたものの、一方でナノシートから溶媒への非常に速い熱拡散の存在が示唆されている。

第3章「放射光 X 線の吸収分光に基づく担持 Pt ナノ粒子のマイクロ波加熱下その場ナノ温度測定」では、様々な触媒反応の活性点として機能する担持 Pt ナノ粒子の温度測定が実現されている。Pt 内殻電子の X 線吸収微細構造 (XAFS) によるその場 (*in situ*) 分析により、温度依存的に変化するデバイワラー因子 (σ) が算出され、 σ の値をもとに Pt ナノ粒子の温度 (T_{Pt}) が推定されている。Pt/Al₂O₃ については、放射温度計で測定した触媒層表面の温度 (T_{ex}) よりも T_{Pt} が 101℃ 高温であった。Pt/SiO₂ については T_{Pt} が T_{ex} よりも 227℃ 高温であり、より高温の局所高温場の生成が示唆されている。この結果は非常に大きな温度差を有するナノメートルスケールの局所高温場の形成を初めて示すものであり、局所高温場を利用した触媒反応応用に向けて重要な研究成果である。

第4章「担持 Pt ナノ粒子触媒の局所高温場に基づく反応促進」では、第3章で観測した局所高温場が、気相流通触媒系の反応に与える影響を明らかにするために、担持 Pt ナノ粒子による 2-プロパノール流通下での触媒反応が検証されている。2-プロパノールの脱水素反応に起因するアセトン収率をもとに、Pt/Al₂O₃ を触媒としたときにはマイクロ波加熱下において約 25℃ 相当の反応促進結果が得られ、Pt/SiO₂ についてはより大きな約 50℃ 相当の反応促進効果が得られている。第3章において Pt/SiO₂ はより大きな温度差を有する局所高温場を示しており、ここで Pt ナノ粒子の局所温度の高温化により反応促進量が向上することが明らかとされている。さらに、Pt ナノ粒子の局所高温場からの伝熱を必要としない Pt ナノ粒子の還元反応に対する局所高温場のナノ温度の影響を検証するため、2-プロパノール流通下における PtO₂/Al₂O₃ の還元反応ダイナミクスについて、X 線吸収分光による分析が行われている。マイクロ波による 100℃ 相当の大きな反応促進結果が得られ、第3章で得られた Pt/Al₂O₃ の局所高温場における温度差 (100℃) と対応している。局所高温場そのものが化学変化する系において、劇的な反応促進効果が得られることを明らかとしている。

第5章「担持金属ナノ粒子の局所高温場形成に影響する因子の解明」では、局所高温場のさらなる高温化および触媒反応速度の向上に向けた触媒設計指針の提案を目的とし、担持量、粒径、酸化数、担持金属種 (Pt, Pd) と担体の種類 (Al₂O₃, SiO₂) を変えた担持金属触媒について、*in situ* XAFS 測定に基づくナノ温度測定が行われ、局所高温場の温度に対するそれぞれの物性値の影響を検証している。

第6章「担持金属ナノ粒子のマイクロ波発熱メカニズムの検証」では、結晶構造が明らかな単結晶基板を担体として担持金属ナノ粒子の担持量や幾何学構造、また担体の種類を系統的に変化させてマイクロ波加熱実験およびナノサイズの電磁場・伝熱の連成シミュレーション解析が行われ、マイクロ波発熱量に影響を与える因子が詳細に検証されている。特に担持金属ナノ粒子のネットワーク構造に

基づく導電性とマイクロ波電場の波長短縮に影響する担体や界面分極の誘電性が、マイクロ波発熱特性に対して重要であることを明らかとしている。ここで担持金属ナノ粒子のマイクロ波発熱特性を向上させ、劇的な触媒反応促進効果を達成するための新たな指針が構築されたと言える。

第7章「結論」では、本研究の総括ならびに展望を記述している。

以上要するに、本論文は、担持金属触媒の触媒反応場であるナノ金属に発生する所高温場を利用したマイクロ波化学の分野を新たに切り拓くものであり、マイクロ波を利用した革新的化学プロセスの確立に向けた指針を示しており、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として十分価値があるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。