

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	銅を基軸とする多元素サブナノ粒子の酸化触媒機能
Title(English)	
著者(和文)	小泉宙夢
Author(English)	Hironu Koizumi
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11787号, 授与年月日:2022年3月26日, 学位の種類:課程博士, 審査員:山元 公寿, 梶田 宗隆, 吉沢 道人, 田辺 真, 野村 淳子, 今岡 享稔
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11787号, Conferred date:2022/3/26, 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	小泉 宙夢	
		氏名	職名		
論文審査 審査員	主査	山元 公寿	教授	野村 淳子	准教授
	審査員	穂田 宗隆	教授	今岡 享稔	准教授
		吉沢 道人	教授		
		田辺 真	教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「銅を基軸とする多元素サブナノ粒子の酸化触媒機能」と題し、5章の和文で構成されている。

第1章「序論」では、銅を基軸とした多元素サブナノ粒子を基盤とする炭化水素酸化触媒の開発に至った経緯および背景を述べ、本研究の位置付けと目的について述べている。多元素が含まれるサブナノ粒子は、相分離が起きにくい原子軌道の混成による多元素特有の電子状態が発現して、特異な触媒機能が期待されている。本研究では、バルク状態では混ざらない元素のサブナノ粒子に着目し、銅とビスマス、また銅とルテニウムから成る二元系サブナノ粒子の合成に成功している。それらの合金サブナノ粒子の特異的な酸化触媒活性を明らかにしている。

第2章「酸化銅—酸化ビスマスサブナノ粒子の合成とその酸化触媒機能」では、酸化還元特性を示す「銅」と非共有電子対をもつ安定な典型元素である「ビスマス」で構成されるサブナノ酸化物粒子の精密合成について述べている。HAADF-STEMおよびSTEM-EDXの電子顕微鏡の観察により、バルク状態では合金となり難い銅とビスマスが混じり合うことを見出している。合成したCu-Bi銅-ビスマス酸化物サブナノ粒子を触媒としてスチレン酸化反応を実施し、ナノ粒子に比べ60倍以上の高い活性がみられたことを述べている。高い活性にはビスマスが共存する銅や担体シリカと強固に結合するため、担体からのリーチングを抑制する効果によるものと考察している。

第3章「酸化銅—酸化ルテニウムサブナノ粒子の合成とその酸化触媒機能」では、銅—ルテニウム酸化物サブナノ粒子に着目し、工業的有用性の高いエチレンのエポキシ化反応の触媒機能について記述している。バルク状態では混和しない組み合わせである、銅とルテニウムをサブナノスケールで混合させることに成功し、合金サブナノ粒子が触媒として働き、エチレン気相酸化における活性および選択性が向上することを見出している。銅—ルテニウム酸化物サブナノ粒子は、酸化銅サブナノ粒子に比べ16倍のエチレンオキシド収率を与えることを確認している。

第4章「多元素サブナノ粒子によるプロピレン気相酸化」では、エチレンのエポキシ化よりも高難度であるプロピレンのエポキシ化について記述している。酸化銅ナノ粒子触媒の反応ではアクロレインが主生成物であり、プロピレンオキシドはほぼ生成しないが、サブナノ粒子ではプロピレンオキシドが生成されることを明らかとしている。プロピレン気相酸化においても、サブナノ酸化物粒子を銅とルテニウムで合金化することにより、エポキシ生成の選択率が向上し、銅とルテニウムの相乗効果について考察している。プロピレンのサブナノ粒子触媒による反応において、プロピレン転化率とプロピレンオキシド選択率の関係を詳細に整理し、最適条件を説明している。反応温度275℃で、最も高いプロピレンオキシド収率を与え、酸化銅サブナノ粒子に比べて5.3倍の活性となることを見出している。Cu-O-Ru結合は還元されやすく、プロピレンが酸素を受け取りCu種がCu(I)へと還元される機構を提案している。

第5章「総括」では、本研究で得られた成果を総括し、今後の展望について述べている。

以上を要するに、本論文ではバルク状態では混ざらない2元素に着目し、1 nm以下にまで精密微細化することで、二元系合金サブナノ粒子の合成に成功している。さらに、それらの合金サブナノ粒子の特異的な酸化触媒活性を明らかにしており、工学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な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、東工大リサーチポータル(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。