

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 13587 号
------	---------------

氏 名 村田 和優

論 文 題 目

Design of Structure and Catalysis of Supported Metal
Nanoparticles by Understanding Metal-Support Interaction
(金属-担体間相互作用の理解による担持金属ナノ粒子の構造と
触媒作用の設計)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	薩摩 篤
委員	名古屋大学	教授	鳥本 司
委員	名古屋大学	教授	永岡 勝俊
委員	名古屋大学	講師	沢邊 恭一

論文審査の結果の要旨

村田和優君提出の論文「Design of Structure and Catalysis of Supported Metal Nanoparticles by Understanding Metal-Support Interaction (金属-担体間相互作用の理解による担持金属ナノ粒子の構造と触媒作用の設計)」は、担持金属ナノ粒子の特異な形状、表面サイト、酸化状態を金属-担体間相互作用の理解に基づいて制御し、メタン燃焼、CO酸化等において高活性な担持金属触媒の開発に成功している。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、金属ナノ粒子の実用面での重要性と学術研究の進捗状況を紹介している。ナノメートルレベルの金属ナノ粒子はバルク金属とは異なる性質を示すが、さらに粒子の支持体である担体との金属-担体間相互作用を制御することで、優れた触媒の開発を目指した本論文のコンセプトを述べている。

第2章では、アルミナ担持Pdナノ粒子の表面構造を金属-担体間相互作用で制御し、メタン燃焼、CO酸化、シンナムアルデヒド水素化に高い活性を示す触媒を設計した成果を述べている。Pdナノ粒子の表面構造がアルミナ表面に存在するAlサイトの配位不飽和度に依存することに着目し、配位不飽和度の低い θ -アルミナに担持したPdナノ粒子を用いることで、通常使用される γ -アルミナを担体とするよりも7倍以上高いメタン燃焼活性を得た。シンナムアルデヒドの水素化も同様に θ -アルミナが担体として有効であった。また、CO酸化反応はコーナーサイトとPd(111)面が高活性を示すことを明らかにしている。これらは学術的に価値が高く、工学的にも有用な知見である。

第3章では、ナノ粒子の形態制御が、調製時の還元性ガスの種類を変えることで実現できることを明らかにしている。Pd表面に強く吸着するCOによって還元されたPdナノ粒子はステップサイトを豊富にもつ球状あり、一方、水素によって還元されたPdナノ粒子はプレーン表面をもつ扁平な形状であった。シンナムアルデヒドの水素化においては、球状のPdナノ粒子がC=C結合の水素化に高活性および高選択性を示すことを明らかにしている。

第4章では、担体の酸化還元性が金属-担体間相互作用に及ぼす効果を明らかにしている。担持Pd触媒上でのメタン燃焼反応と金属担持酸化セリウム上でのSoot燃焼反応において、活性が担体あるいは金属ナノ粒子の金属-酸素結合エネルギーに対して火山型の傾向を示すことを見いだしており、担持金属ナノ粒子の酸化還元性がチューニング可能であることを明らかにした。この成果は高効率な環境触媒の設計に有用な知見である。

第5章では、担体の親/疎水性が水蒸気存在下でのメタン燃焼に及ぼす影響を報告している。実用的な条件では燃焼排ガスに多量の水蒸気が共存しており、耐水蒸気性の高い触媒が求められている。疎水性の高い α -アルミナ表面では水の可逆的な吸脱着が速いため、Pdの水蒸気被毒抑制効果があることを見いだしている。これは工学的に有用な知見である。

第6章では、本研究の結論を与えている。

以上のように本論文では、金属-担体間相互作用の理解に基づいた担持金属ナノ粒子の設計を明らかにしている。これらの結果は、高活性・高選択性な触媒を設計する上で重要な知見であり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である村田和優君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。