



Title	Studies on Catalysis of Metal Complexes and Nanoparticle on Inorganic Supports [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	石戸, 信広
Citation	北海道大学. 博士(理学) 甲第12775号
Issue Date	2017-03-23
Doc URL	<a href="http://hdl.handle.net/2115/65559">http://hdl.handle.net/2115/65559</a>
Rights(URL)	<a href="http://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/">http://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/</a>
Type	theses (doctoral - abstract and summary of review)
Additional Information	There are other files related to this item in HUSCAP. Check the above URL.
File Information	Nobuhiro_Ishito_review.pdf (審査の要旨)



[Instructions for use](#)

# 学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（理学） 氏名 石戸 信広

審査担当者	主査	教授	加藤 昌子
	副査	教授	福岡 淳
	副査	教授	澤村 正也
	副査	教授	向井 紳
	副査	准教授	中島 清隆

## 学位論文題名

Studies on Catalysis of Metal Complexes and Nanoparticle on Inorganic Supports  
(無機担体に担持した金属錯体および金属ナノ粒子の触媒作用に関する研究)

持続可能な社会の実現のために、環境に負荷を与えず資源を最大限に活用するための技術として高機能触媒の開発が望まれている。これまでに均一系触媒を不溶性の担体に担持して不均一系触媒とする手法が検討されてきたが、触媒活性や選択性の低下、担体からの触媒溶出など耐久性に問題がある場合が多い。本論文では、メソ細孔構造をもつメソポーラス有機シリカに着目し、錯体触媒の固定化や金属ナノ粒子の担体として利用した。また、二酸化炭素の有効利用法として逆水性ガスシフト反応にも取り組んでいる。

第一章は序論であり、研究の背景と目的を述べている。

第二章では、ピピリジン基を含有したメソポーラス有機シリカ (BPy-PMO) 表面上でのルテニウム錯体の形成と、それをを用いたアルカンの酸化反応について記述している。まず、BPy-PMO の細孔構造が保持されたまま骨格表面にルテニウムピピリジン錯体が形成されることを各種分光法で明らかにしている。この固定化錯体をアダマンタンとデカリンの酸化反応に適用すると、3級 C-H 結合の酸化が進行し3級アルコールが主生成物として得られることを見出している。既報の触媒に比べ3級 C-H 結合に対する高い酸化選択性が得られている。また、高濃度で錯体固定化が可能であることから、生成物収率も高くなる。さらに、本触媒では活性および選択性を維持したまま繰り返し使用が可能であり、耐久性にも優れている。

第三章では、BPy-PMO への錯形成を利用した担持金ナノ粒子触媒の合成について記述している。これまで、金前駆体との相互作用が小さいシリカ担体上では6 nm 以下の金ナノ粒子を形成することは困難であったが、BPy-PMO と塩化金酸を反応させることにより表面上に金錯体を形成し、その後の還元処理で平均粒子径 3.8 nm の金ナノ粒子が生成する。この金ナノ粒子はベンジルアルコールの酸化反応で高い触媒活性を与える。

第四章では、アルミナ担持金触媒による逆水成ガスシフト反応の機構研究について記述している。二酸化炭素の逆水性ガスシフト反応の中間体であるギ酸に着目し、赤外分光法による検討からアルミナ上でのギ酸分解中間体として四種のギ酸塩を特定している。また、温度上昇によりこれらのギ酸塩から一酸化炭素が効率的に生成する。さらに、アルミナに金ナノ粒子を担持した固体触媒を用いた二酸化炭素の水素還元反応を行ったところ、高い一酸化炭素収率と選択率が得られる。金触媒上でのギ酸生成に続き、担体であるアルミナ上でギ酸から一酸化炭素への分解が起こると考察している。

第五章では、結果と考察をまとめ研究を総括している。

以上のように、本論文では担体材料、目的反応および反応機構の観点から固体触媒の設計を進めるというアプローチにより、アルカン酸化と二酸化炭素還元において高活性・高選択性を与えるという新規性・独創性の高い知見を得ており、触媒化学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって、著者は北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。