

氏名(本籍)	倉持宏実(東京都)		
学位の種類	博士(工学)		
学位記番号	博甲第993号		
学位授与年月日	平成4年3月25日		
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当		
審査研究科	工学研究科		
学位論文題目	単結晶Ni清浄表面での炭化水素の分解反応		
主査	筑波大学教授	工学博士	内島俊雄
副査	筑波大学教授	工学博士	白川英樹
副査	筑波大学教授	理学博士	浅野肇
副査	筑波大学教授	理学博士	国森公夫
副査	化学技術研究所主任研究員		
		理学博士	野副尚一

論文の要旨

本論文は、変遷金属触媒による炭化水素分解反応において、その構造敏感な特徴を微視的に解明しようとするもので、そのためにテラスとステップを合わせもつNi(755)単結晶を触媒として用い、 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルカンおよび $C_4 \sim C_8$ のn-アルカンを反応物として、それらの分解素過程を超高真空下の実験によって検討している。研究手法としては、主にオージェ電子分光法(AES)、低速電子線回折(LEED)および昇温脱離法(TPD)を適用している。

Ni(775)に123Kで予め炭化水素を吸着し昇温させると、その種類により2または3本の親分子によるピークが低温側に出現し、次いで分解による水素が脱離する。他の生成物は検出されず、すべての炭化水素は、最終的に炭素と水素とに分解することが分かる。重水素を前吸着した系での同一の実験から、炭化水素との水素交換反応は生起せず、素過程に可逆過程が含まれないことも明らかにされた。

炭化水素のドーズ量を変えたときのTPD実験から、2~3本の各脱離親分子ピークを、多層吸着、テラス上単分子層吸着およびステップ上単分子吸着とに各々同定するたことが出来、それらのピークと分解水素発生の関係および重水素被毒効果の被覆率依存性を解析することにより、C-Hの開裂がステップ上で生起するとする、従来からの主流の考え方を支持する結果となり、構造敏感性をマイクロな見地から証拠づける結果が得られた。また、ドーズ量を変えた同上的実験から、脱離親分子および分解水素の濃度積分量をドーズ量ゼロに外挿することにより、初期分解率を定義し定量的に評

価することが可能であり、一方TPDピーク温度の解析から親分子の脱離エネルギーを算出することができる。用いた各炭化水素についてこれを行い、初期分解率と脱離エネルギーの相関を求めたところ、2種の例外を除き、脱離エネルギーが高いほど初期分解率が高いという極めて良好な直線関係が得られた。例外はシクロプロパンとシクロペンタンの2種で、上の相関から予想されるよりもはるかに高い分解率を与える。その理由づけは、今後の課題として残されるが、Ni(111)等の低指数面での同様の研究にその解明の鍵があると考えられ、現在その方向に研究を発展させている。以上のとおり、Ni単結晶高指数面を用いて、炭化水素分解の構造敏感性の由来を、系統的な研究により相当程度に解明し得たものである。

審 査 の 要 旨

本論文は、遷移金属触媒による炭化水素分解の構造敏感性の由来を、テラスとステップをもつNi(755)単結晶面を用い、最新の表面科学手法によって系統的に解明したもので、緻密で粘り強い研究の結果、説得力のある成果を得ており、触媒化学および表面科学分野への貢献には大きいものがある。

よって、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。