

氏 名 (本 籍)	にし むら ひろ のぶ 西 村 浩 宣 (神奈川県)
学 位 の 種 類	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 甲 第 2609 号
学位授与年月日	平成 13 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審 査 研 究 科	工学研究科
学 位 論 文 題 目	銅およびロジウム単結晶モデル触媒の表面科学的研究
主 査	筑波大学教授 理学博士 国 森 公 夫
副 査	筑波大学教授 理学博士 秋 本 克 洋
副 査	筑波大学教授 P h . D . 山 本 恵 彦
副 査	筑波大学助教授 工学博士 重 川 秀 実
副 査	筑波大学助教授 理学博士 中 村 潤 児

論 文 の 内 容 の 要 旨

触媒活性点や反応メカニズム等の問題を解明するためには、触媒表面を原子レベルで観察する必要がある。しかしながら、粉体触媒の表面観察は大変困難である。これに対して、単結晶表面をモデル触媒とした表面科学研究が有効な研究手法となる。粉体触媒上とモデル触媒上で同一の反応が起こることが前提となるが、一旦モデル触媒を確立できれば、粉体触媒にかわり単結晶モデル触媒を表面科学的手法により観察することで、触媒活性点や反応メカニズム、素過程のキネティクス等の問題について、原子レベルで解明することが可能となる。そこで、本研究では、以下の 2 つのテーマについて研究を行った。

- (1) Cu 単結晶モデル触媒：CO₂ の水素化によるフォーメート合成反応に関して、生成と分解のキネティクスが一致したことから、Cu (111) 単結晶表面上と Cu/SiO₂ 粉体触媒上で同一の反応が起きていることがわかった。すなわち、Cu (111) 単結晶表面は、Cu/SiO₂ 触媒のモデル触媒として妥当である。したがって、Cu (111) モデル触媒に表面科学的手法を用いることにより、フォーメート生成のメカニズムや素過程のキネティクスを原子レベルで解明することが可能となった。
- (2) Rh 単結晶モデル触媒：Rh (100) 表面上の MnO および Mn の構造を明らかにした。MnO は CO の吸着に大きな影響を及ぼさないが、Mn は大きな影響を及ぼすことがわかった。Mn の酸化状態の違いにより化学的性質の違いがみられる点が興味深い。また、Rh 上の MnO は CO により容易に還元される。したがって、Rh-Mn 触媒上の Mn は、CO 水素化反応中に還元されてメタリックな Mn としてあるいは Rh-Mn 合金として存在すると考えられる。

上述のように、単結晶表面を用いたモデル触媒の研究によって、粉体触媒の研究では得られない活性点やキネティクスに関する表面現象を明らかにした。

審 査 の 結 果 の 要 旨

高圧反応器を用いた表面科学的手法によって、単結晶モデルおよび担持触媒の表面で起こるフォーメート種の合成と分解に対して、キネティクスの一致を導いたことが高く評価される。また、走査トンネル顕微鏡などを用

いて、ロジウム触媒に添加したマンガンの表面構造、酸化状態およびCO吸着挙動を明らかにした。特に、MnO種が容易に還元されRh-Mn表面合金がCO吸着に影響を及ぼすことを実験的に示した点に意義がある。反応器を併用したモデル触媒の研究成果として重要である。

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。