

様式10

論文審査の結果の要旨

報告番号	甲 先 第 273 号	氏 名	大竹尚孝
審査委員	主査 森賀俊広 副査 外輪健一郎 副査 杉山茂		

学位論文題目

水熱反応により合成した高耐熱性酸化セリウムの接触変換特性

審査結果の要旨

本研究では、様々な分野で先端材料として利用されている酸化セリウムの欠点であった耐熱性に劣る性質を、水熱合成を応用して克服し、世界でトップとなる熱安定性を示す酸化セリウムの合成に成功した。提案した調製法は、硝酸第二セリウム溶液を原料とした水熱反応であり、比表面積が高く、特に高純度であるとともに耐熱性に優れた酸化セリウムの合成を達成できた。この酸化セリウムは、結晶性の高い一次粒子同士が低い密着性を保ったまま凝集することで大きな細孔容積を保持しており、それによって高温焼成後にもシンタリングが防止され高い比表面積を維持できたと結論付けています。また、ここで合成した酸化セリウムをエタノールの脱水反応およびメタン燃焼に対する触媒として用い、他の汎用的な酸化セリウムとの比較を行った。前者については、今回調製した酸化セリウムが高い比表面積及び高い純度(多くの塩基点)の双方を保持しているため、高活性を示すことを見出している。さらに、反応機構の考察を行い、今回調製した酸化セリウムが強い塩基点とともに弱い酸点を保持しており、アルコール分子の中で最も酸強度の強い β -Hが優先的に酸化セリウムの塩基点に吸着することで進むE1cB機構により反応が進むことを確認した。後者についても、今回調製した酸化セリウムが最も高い活性を示し、高比表面積と高純度による粒子表面由来の活性酸素の放出量が多かったためであったと結論付けている。特に、温度効果を検討することにより、約830Kを境として、それ以下の温度域では触媒の比表面積が大きく触媒活性に影響する表面反応律速、一方それ以上では触媒特性の影響が軽微な拡散律速で燃焼反応が起こることを明らかにした。

以上本研究は、産業界から望まれていた高温安定性酸化セリウムの調製に成功し、触媒活性も著しく高いことを明らかにしている。そのため、高評価論文としてJournal of the Ceramic Society of Japan, 125巻, 2号誌(2017)の表紙に採用されるなど専門家の評価も高く、本論文は博士(工学)の学位授与に値するものと判定する。