

論文審査の要旨および学識確認結果

報告番号	(甲)乙第 号	氏 名	豊島 遼
論文審査担当者：	主査	慶應義塾大学教授	博士(理学) 近藤 寛
	副査	慶應義塾大学教授	工学博士 藪下 聡
		慶應義塾大学教授	理学博士 中嶋 敦
		慶應義塾大学教授	博士(工学) 栄長 泰明
<p>(論文審査の要旨)</p> <p>学士(理学)、修士(理学) 豊島遼君提出の学位請求論文は「Adsorption and Catalytic Oxidation Reaction on Platinum-Group Metal Surfaces under Near Ambient Pressure Conditions (準大気圧下における白金族金属表面への吸着と触媒的酸化反応)」と題し、全5章より構成されている。</p> <p>白金族金属表面を用いた触媒は現代社会の様々な場で利用されているが、さらに高性能な触媒を開発するためには、原子レベルでの触媒反応メカニズムの解明が必要不可欠である。原子レベルでのメカニズム解明を目指した研究の多くは、分光法や顕微鏡的手法に基づく表面科学的アプローチによって精力的に行われてきたが、その多くが超高真空槽の中の極めて清浄な環境で触媒表面を調べる方法を採用してきた。一方で、実在触媒は大気圧下で作動するものがほとんどであり、これまでのメカニズム研究における試料環境と実在触媒の置かれる環境の隔たりは「圧力ギャップの問題」と呼ばれる解決すべき課題となっており、これを克服するようなアプローチによる研究が求められていた。</p> <p>本論文の著者はこのような課題を克服するアプローチとして、準大気圧下で表面化学状態に関する情報を得ることができる新しい手法に注目し、優れた排気ガス浄化触媒として実用化されている白金族金属の表面へ反応分子が準大気圧下でどのように吸着し、どのように反応するかをその場観測する研究にこの手法を応用した。このような観測を通して、準大気圧下で初めて見られる反応分子の吸着挙動や触媒が準大気圧下で実際に作動しているときの触媒活性相を明らかにした。</p> <p>第1章は序論であり、本研究の背景と目的について述べられている。不均一触媒反応に関わるこれまでの表面科学的研究の状況について概観し、触媒となる金属表面とそこに吸着する分子の特徴がまとめられている。次に実作動環境下測定に対応した最近の表面科学的手法を紹介したうえで、最後に本研究の目的が示されている。</p> <p>第2章では、本研究で用いる実験的・理論的手法(X線光電子分光、赤外反射吸収分光、低速電子線回折、密度汎関数法)について、それぞれの原理および装置と計算法が述べられている。</p> <p>第3章では、白金族金属の単結晶表面および合金単結晶表面上に室温で形成される一酸化炭素(CO)または一酸化窒素(NO)の吸着状態の超高真空から準大気圧までの圧力依存性について述べられている。分子を暴露し圧力を変化させた際の吸着状態の変化をその場観測した結果、CO吸着系においては、圧力に対して分子吸着構造が可逆的に変化し、圧力が高い領域では高密度吸着相を形成したり吸着サイトがスイッチすることが明らかにされている。また、NO吸着系においては、高い圧力領域で解離による酸素原子との共吸着相を不可逆的に形成することが見出されている。</p> <p>第4章では、三つの代表的なPd単結晶表面における準大気圧下でのCO酸化反応について述べられている。各Pd表面に対して、COとO₂を準大気圧で暴露し、種々の条件に対するCO₂の生成速度と表面状態をその場観測した結果、三つのPd表面に共通して、反応活性な条件では表面に高密度な原子状酸素相が形成されていることが見出され、このような高密度原子状酸素は金属、酸化物いずれの表面でも形成しうるということが明らかにされている。この事は、実環境下でのCO酸化反応の活性相については、これまで考えられてきたものとは異なる見方が必要なことを示している。</p> <p>第5章では、本研究で得られた知見について総括し、本研究の結論と触媒反応メカニズムの解明を目指す研究の今後の展望について述べられている。</p> <p>以上まとめると、準大気圧下で測定可能な新しい表面分光的手法を用いて、これまで不明であった準大気圧下での白金族金属表面への吸着挙動と触媒活性相を明らかにした。本研究は、実作動条件下での触媒表面の反応メカニズムの理解に貢献するものであり、表面科学および触媒科学への学術的寄与は少なくない。よって、本論文の著者は博士(理学)の学位を受ける資格があるものと認める。</p>			
学識確認結果	学位請求論文を中心にして関連学術について上記審査会委員で試問を行い、当該学術に関し広く深い学識を有することを確認した。 また、語学(英語)についても十分な学力を有することを確認した。		

※ ○○ ○○には審査担当者氏名、△△△△には、「上記審査会委員」等と記載する。