OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Atomic-Scale Characterization of CeO2 Surfaces Using Scanning Probe Microscopy
Author(s)	金, 庚民
Citation	大阪大学, 2026, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/105533
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　　名　（金　庚民）	
論文題名	Atomic-Scale Characterization of CeO_2 Surfaces Using Scanning Probe Microscopy （走査型プローブ顕微鏡を用いたCeO_2表面の原子スケール特性評価）

論文内容の要旨

セリア（CeO_2）は、Ce^{4+}とCe^{3+}の可逆的な酸化還元および酸素欠陥形成に基づく高い酸素貯蔵能を有し、水性ガスシフト反応や酸化反応に用いられる代表的な酸化物触媒である。これまで電子顕微鏡法や光電子分光法を用いた研究により、セリアの結晶構造、平均的な還元度と反応性、欠陥濃度の制御に関する理解は大きく進展してきた。しかし、これらの手法で得られる情報は主として面直方向に平均化されたものであり、実際に反応が進行する最表面における局所的な欠陥サイトの反応性や、その周辺に吸着した分子の形態や配置については、未解明な点が多く残されている。

このような背景のもと、本論文では、非接触原子間力顕微鏡を中心とした走査型プローブ顕微鏡手法を用い、従来セリア表面では直接観察が困難とされてきたCe^{3+}サイトおよび分子吸着状態を、原子スケールで実空間同定することを目的とした。さらに、周波数シフト分光を組み合わせることで、各原子サイトにおける局所的な化学的相互作用を力学的指標として定量的に評価する手法を構築した。

具体的には、以下の成果を得た。第一に、原子分解能で安定した観察が可能なCeO_2薄膜の成膜手法と、原子レベルで制御された探針作製手法を確立した。第二に、わずかに還元したCeO_2(111)表面において、Ce^{3+}サイトをAFMにより直接可視化し、周波数シフト分光に基づく局所反応性の同定に成功した。第三に、水および二酸化炭素分子の吸着挙動を単一分子レベルで解析し、それらの実空間分布および吸着構造を明らかにした。第四に、極性に起因して複雑な表面構造を示すCeO_2(100)表面について、複数の再構成構造を原子レベルで決定し、理論計算と組み合わせることで局所的な分子吸着状態を解明した。

以上の結果から、本論文は、空間平均的な指標に依存しない原子レベルのセリア表面評価手法を確立し、欠陥サイトと分子吸着の関係を実空間で結び付ける新たな工学的基盤を提供するものである。

様式７

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　金　庚民　）		
	（職）	氏　名
論文審査担当者	主査　教授 副査　教授 副査　教授	阿部真之 酒井朗 浜屋宏平

論文審査の結果の要旨

本論文は、酸素貯蔵能に優れた酸化物触媒であるセリア（CeO_2）表面における欠陥サイトと分子吸着状態を原子スケールで解明することを目的とし、非接触原子間力顕微鏡を中心とした走査型プローブ顕微鏡手法を用いて体系的に検討したものである。従来手法では面直方向に平均化された情報しか得られず、最表面の局所反応性に関する理解は不十分であったが、本研究は周波数シフト分光を組み合わせることで各原子サイトの化学的相互作用を力学的指標として定量評価する手法を構築した点に特色がある。まず、原子分解能観察が可能なCeO_2薄膜の成膜法と探針作製法を確立した。次いで、還元CeO_2(111)表面においてCe^{3+}サイトの直接可視化と局所反応性の同定に成功した。さらに、水および二酸化炭素の吸着挙動を単一分子レベルで解析し、実空間分布と吸着構造を明らかにした。加えて、CeO_2(100)表面の複数の再構成構造を原子レベルで決定し、理論計算と併せて分子吸着状態を解明した。これらの成果は、欠陥サイトと分子吸着の関係を実空間で結び付ける原子レベルの表面評価手法を確立し、触媒表面科学の発展に寄与する重要な知見を与えるものである。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。