



Title	酸化ニッケル触媒上の表面酸素の性質
Author(s)	Safee, Chaudhri
Citation	大阪大学, 1973, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/30697
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について <a>〉 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

氏名・(本籍)	サフイーチャョードリー Safee Chaudhri
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	第 2730 号
学位授与の日付	昭和48年3月24日
学位授与の要件	理学研究科無機及び物理化学専攻 学位規則第5条第1項該当
学位論文題目	酸化ニッケル触媒上の表面酸素の性質
論文審査委員	(主査) 教授 桑田 敬治 (副査) 教授 桐山 良一 教授 音在 清輝 教授 加藤 俊二

論 文 内 容 の 要 旨

酸化ニッケルは、非化学量論的過剰酸素に基づく興味深い物性及び触媒活性を示す。本研究は、酸化ニッケルの表面状態及び表面酸素の挙動を解明する目的で、3種の異なる温度において調製・熱処理を行なった酸化ニッケル触媒について重酸素トレーサーによる表面酸素の反応性に関する検討を行い、更に可視・紫外及び赤外分光法による表面状態の検討とX線回折法による触媒の粒度又は結晶性の検討を行ったものである。

重酸素¹⁸Oを含む酸素を用いて、酸化ニッケル触媒による一酸化炭素の酸化を行い、生成する炭酸ガス中の¹⁸O濃度の測定結果に基づき表面上の酸素の活性を比較したところ、600℃前後で調製及び熱処理を行った触媒が最大を示すことが見出された。又、反応温度と活性酸素の数の関係において、この触媒は明瞭な階段状の変化を示し、強弱2種類の異なる活性度を持つ酸素の存在が推定された。

350℃において調製及び熱処理された触媒について、ペースト法により測定された可視吸収スペクトルは、高温において調製・熱処理された触媒と異なり、非化学量論的組成に基づくNi⁺³と推定される吸収を示した。この触媒は、一酸化炭素と300℃において処理すれば、~700及び~420 nm付近の吸収帯の強度が減少し、又、外見的にも緑色を呈した。スペクトルの特長は高温において調製・熱処理した触媒のそれに一致した。この触媒を空气中に露出すれば、直ちに酸化されて以前の状態に戻る。従って表面酸素の可逆的な増減と共に表面上のNi⁺³イオンの存在量も変化する事が推定される。

触媒の表面積測定及びX線回折の測定結果は、高温において調製・熱処理を行った触媒が相対的に大きな粒径又は高い結晶化度を有し、表面積の相対的な低下とあわせて、触媒表面の状態が、調製・熱処理により大きく影響を受ける事を示し、触媒活性との間にも密接な関係がある事を示した。

論文の審査結果の要旨

酸化ニッケルは、非化学量論過酸素に基づく興味深い物性及び触媒活性を示す。このような表面酸素と触媒活性との関係は、従来反応速度論の立場から研究されてきたのみである。本研究は、新たに重酸素トレーサーを用いて表面酸素の反応性に関する検討を行い、更に分光学的方法による表面状態の検討、及び表面積測定、X線回折による粒度と結晶性の検討を行ったものである。

酸化ニッケル上において、4.8%の重酸素 ^{18}O を含む酸素を用いて一酸化炭素の炭酸ガスへの酸化を行い、生成した炭酸ガス中の ^{18}O 濃度より酸化ニッケル表面上の活性酸素の量を算出し、この値の反応温度による変化を調製条件の異なる触媒について比較した。600°C前後の温度において調製及び熱処理を行った触媒が最大の活性を示すことが見出された。

又、活性酸素の数はこの触媒について明瞭な階段状の変化を示し、活性度の異なる2種類の表面酸素の存在が推定された。これに対し、350°C又は800°Cにおいて調製及び熱処理された触媒は、活性の連続的に異なる表面酸素の存在を示した。これらの結果は、従来の反応速度論的研究による触媒活性の変化とよい対応を示す。

微粒状の触媒について、KBr錠剤法又はペースト法による紫外・可視、赤外吸収の測定を行い、各種の酸化、還元処理による表面状態の変化を考察した。

触媒の表面積測定及びX線回折の結果により、高温において調製・熱処理を行った触媒は、相対的に大きな粒径又は高い結晶化度を示し、触媒表面の状態が調製・熱処理の条件により大きく影響を受ける事を見出し、触媒活性との間に密接な関係をもつ事を示した。

以上、チョードリー君の研究は、酸化触媒として興味ある活性を示す酸化ニッケルについて、表面上の活性酸素の本性を詳細に検討し、その触媒活性及び触媒反応機構に関する多くの興味深い知見を得た。よって本論文は、理学博士の学位論文として十分価値あるものと認める。