

専攻	材料システム工学	学籍番号	853519	指導教官氏名	上野 晃史
申請者氏名	高橋 直行	高橋			角田 範義
					堤 和男

論文要旨

論文題目	スピコート法で調製した酸化鉄膜の磁気特性と触媒作用
------	---------------------------

(要旨 1,200字以内)

固体表面の触媒作用を理解し、既知の触媒反応の改良や新規な触媒を開発する目的で、近年固体表面の構造と触媒機能に関する多くの情報が表面科学の支えで集積され、整理されてきている。しかしながら、それらの表面状態の情報はスパッタリング法やCVD法により調製された膜からのものが多く、通常溶液から沈澱を得て調製される粉末状触媒の表面状態と同一視することはできない。従って、その触媒作用を比較検討するためには粉末触媒と同じ手法で膜を調製することが不可欠である。この立場にたってはじめて①触媒作用は触媒表面のみの物性に支配される。②触媒作用は内部構造に起因する表面物性に支配される。の2点について討論することができる。本研究では、硝酸鉄-エチレングリコール溶液を出発原料として γ -酸化鉄の粉末と膜の調製をし、シス-2-ブテンに対する両者の触媒的挙動について検討を行った。

得られた γ -酸化鉄膜の特性についてまとめると、①ゾルゲル溶液の粘度、スピナーの回転数により膜厚を制御し、均質な酸化鉄膜を得ることができる。②得られた γ -酸化鉄膜は強磁性的挙動を示し、保磁力は小さいものの、飽和磁化の値は粉末 γ -酸化鉄の65%を示した。③この酸化鉄膜は球状の微粒子から構成され、更にその

結晶径は膜厚の減少に伴い変化する。④近赤外域での光の透過率は90%近くであり、光磁気記録媒体に応用できる可能性がある。⑤硝酸鉄のエチレングリコール溶液のゲル化過程でエチレングリコールの多量体が生成し、その多量体の鎖の中で酸化鉄クラスターが生成し、これが微粒子単分散膜を形成する原因となっている。ことが明かとなった。

次に、この γ -酸化鉄膜の表面の性質を検討するためにシス-2-ブテンの吸着等温線の測定を行い、吸着熱の算出を行ったところ膜厚の減少に伴い吸着熱が増加することがわかった。これは、膜厚の減少（微粒子化）に伴い一次粒子表面に生成した α -酸化鉄層と粒子内部の γ -酸化鉄層の相互作用による吸着サイトの性質の変化に起因していることが明かとなった。

さらに γ -酸化鉄膜上でシス-2-ブテンの酸化的脱水素反応を行い、この吸着サイトの性質変化の触媒反応に対する影響について検討を行った。転化率は膜厚によらず一定であるが、ブタジエンの選択率が膜厚の減少に伴い増加することがわかった。これは膜厚の減少により、一次粒子表面に生成した α -酸化鉄層と粒子内部の γ -酸化鉄層の相互作用による吸着サイトの性質の変化が、 CO_2 の生成サイトを減少させ、ブタジエンの生成サイトを増加させたことによることが明かとなった。

以上の結果から、本研究では膜と粉体でその表面の性質は異なり、また膜の触媒作用は内部構造に起因する表面物性に支配されるという結論を得た。