

専攻		学籍番号		指導教官氏名	
申請者氏名	中林 浩俊				

## 論文要旨

論文題目	酸化チタン微粒子を含有する複合酸化物の表面特性に関する研究
------	-------------------------------

(要旨 1,200字以内)

本論文では、複合酸化物に発現する強酸点の原因を明らかにするため、微粒子化した $TiO_2$ およびそれを含有する数種類の複合酸化物を調製して、その表面に存在する酸点の性質と酸化物の構造との関係について研究したものである。

$Ti$ のアルコキシドの加水分解法を利用して、異なる平均粒子径を持つ $TiO_2$ 粉体を調製し、その粒子径と表面酸性質の関係を調べた。その結果、 $TiO_2$ 粒子の表面に存在する酸点の性質は、粒子の大きさに依存することが判明した。特に、酸強度は粒子径に著しく依存し、微粒子化によって $H_0 = -5.6$ の非常に強い酸強度を示す $TiO_2$ 粉体も調製した。すなわち、微粒子の $TiO_2$ の表面には、強酸点が発現することを見いだした。この表面に存在する酸点の種類は、電子受容性のLewis酸であることから、微粒子化によって発現する強酸点は、配位不飽和な表面原子の増加と、さらには、 $TiO_2$ 粒子のバンドギャップの増大による価電子帯のエネルギー準位の低下に起因するものと推論した。

表面に強酸点を有する $TiO_2-SiO_2$ や $TiO_2-Al_2O_3$ などの複合酸化物の構造をX線回折やEXAFSなどを用いて解析したところ、非常に微細化した $TiO_2$ 粒子が他の構成酸化物粒子とともに高分散状態で存在していることがわ

かった。TiO<sub>2</sub>粒子はそれ自身の微粒子化によって強酸点を発現することから、複合酸化物に発現する強酸点も複合化によって容易に微細化されたTiO<sub>2</sub>微粒子に起因するものと考えられる。焼成温度の上昇による複合酸化物の構造変化から、含有するTiO<sub>2</sub>微粒子の状態を観察した結果、TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>系では焼成によるTiO<sub>2</sub>粒子の結晶成長や相転移が著しく抑制され、TiO<sub>2</sub>の微粒子がSiO<sub>2</sub>の影響を強く受けていることが判明した。すなわち、TiO<sub>2</sub>とSiO<sub>2</sub>の粒子界面にTi-O-Si結合に起因する相互作用が存在することを示唆した。一方、TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系に存在するTiO<sub>2</sub>粒子はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の影響をそれほど受けておらず、粒子間の相互作用は存在しないことがわかった。TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の表面に存在する酸点はTiO<sub>2</sub>粒子とAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子からそれぞれ発現するLewis酸点のみであり、その性質は含有するTiO<sub>2</sub>粒子の大きさに依存した。ところが、TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>系ではTiO<sub>2</sub>粒子から発現するLewis酸点の他に、新しくBrønsted酸点も発現した。構造面においてTiO<sub>2</sub>とSiO<sub>2</sub>の粒子間にのみ顕著な相互作用が観察されることから、この新しく発現したBrønsted酸点は、構成酸化物粒子間に発生した相互作用に起因するものと推察した。

以上の結果から、金属酸化物を複合化することによって発現する強い酸点には、構成酸化物粒子自身の微細化に起因するLewis酸点と、その粒子間の相互作用に起因するBrønsted酸点との2種類あるものと結論した。