

dispersive NEXAFS 法を用いた 室温以上での Pt(111)上の CO 酸化反応の研究

小宇佐友香¹、阿部仁²、原田大雅¹、仲家幸一郎¹、中本秀一²、
隅井良平³、雨宮健太³、近藤寛²
慶應大院基礎理工¹、慶應大化学²、KEK-PF³

Pt(111)上での CO 酸化反応については様々な手法、条件下で調べられている。しかし室温以上では表面を直接観察する手法ではなく、気相の生成物を検出する方法でしか行なわれていない。活性化エネルギーも報告されてはいるが、その値は 0.4-1 eV とばらつきがある。今回 dispersive NEXAFS 法が高度化され、1 スペクトルあたり 30 ミリ秒程度での測定が可能となった。これにより室温以上での反応追跡が可能になったと考えられたので Pt(111) 上の CO 酸化反応について 300-500 K で測定を行った。この結果について報告する。実験は KEK-PF の BL-16A にて行った。清浄な Pt(111)単結晶基板を冷却し、酸素を吸着させ、240 K まで加熱することで原子状酸素を作成した。この基板を反応温度まで加熱し、その温度に保ち、 1×10^{-8} Torr の CO を流しながら O-K NEXAFS スペクトルを dispersive NEXAFS 法で測定した。

反応温度 400 K における 30 ミリ秒毎の NEXAFS スペクトルを並べたものを図 1 に示す。図 1 を解析して求めた被覆率の時間変化を図 2 に示す。今回はこの被覆率変化の中でも原子状酸素が低被覆率である 0.008-0.023 ML について詳細な解析を行った。原子状酸素の被覆率の時間変化を反応速度とし、300, 350, 400 K についてそれぞれの反応速度定数を求めてアレニウスプロットを行った結果、活性化エネルギーを 1.06 eV と求めることができた。これは、希薄極限の計算値や分子線を使った気相種の観測結果から求めた値とよい一致を示している。

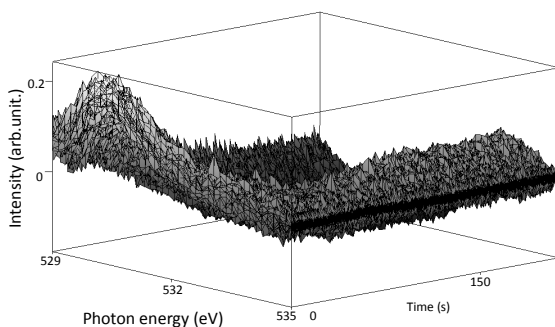


図1. 400 K における O-K 吸収端 NEXAFS
スペクトルの時間変化。

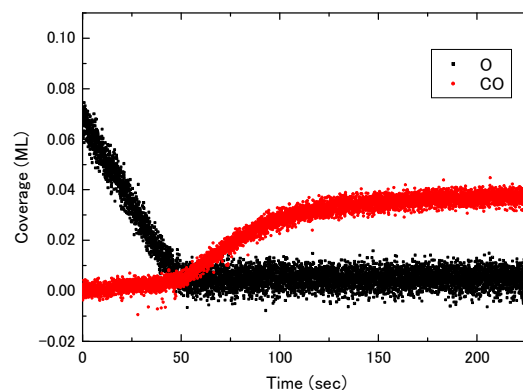


図2. 反応温度 400 K における被覆率の
時間変化。