

極薄酸化 Ni (111) 表面の還元過程：真空および H₂ 中加熱の比較

Reduction Kinetics of Ultrathin Oxide on Ni(111) Surfaces: Vacuum and H₂ Annealing

東北大多元研¹, 原子力機構²

○多賀 稜¹, 小川 修一¹, 尾崎 司¹, 吉田 光², 吉越 章隆², 高桑 雄二¹

IMRAM Tohoku Univ.¹, JAEA²,

○Ryo Taga¹, Shuichi Ogawa¹, Tsukasa Ozaki¹, Hikaru Yoshida², Akitaka Yoshigoe², Yuji Takakuwa¹

E-mail: taga@mail.tagen.tohoku.ac.jp

卑金属である Ni は NO 分解作用を持つが、表面の酸化により失活してしまう[1]。このため、表面酸素を効率的に脱離させることができれば、Ni の NO 分解触媒への応用が期待できる。そこで、本研究では、酸化 Ni(111)表面の還元過程を時間分解光電子分光で調べ、真空および H₂ 中加熱過程を比較し、還元過程の原子スケール反応モデルを提案する。

酸化還元実験は、He I 共鳴線を用いた紫外線光電子分光 (UPS) と放射光 (SPring-8, BL23SU) を用いた光電子分光 (XPS) で測定した。試料は Ni(111)単結晶であり、Ar⁺スパッタおよび H₂ アニールを繰り返して清浄表面を得た。試料は UPS では赤外線導入加熱装置 (サーモ理工社製 GVH298)、XPS では W ヒーターの傍熱で加熱した。100°C で O₂ ガス (1×10⁻⁵ Pa, 3600 s) を供給し酸化 Ni 表面を形成した。真空排気後、H₂ ガス (1×10⁻⁵ Pa) を供給後に加熱保持する H₂ 中加熱実験を行った。比較のために H₂ ガスを供給しない真空中加熱実験も行った。これらの反応過程に UPS では O 2p ピークと二次電子カットオフを、XPS では O 1s/Ni 2p ピークを繰り返し測定した。O 2p と O 1s から酸素吸着量、二次電子カットオフから仕事関数 (ϕ)、Ni 2p から酸化膜厚と酸化状態を求めた。

XPS より O₂ 供給停止後の Ni 酸化膜厚は約 1.3 nm であることが分かった。この表面を 400°C で加熱したときの O 2p 強度および ϕ の時間変化を Fig.1 に示す。加熱により O 2p 強度は減少するが、真空中では 2500 秒加熱後も表面に酸素が残存していると考えられる。一方、H₂ 中では、加熱直後は真空中と似た変化を示すものの、1000 秒付近で急激な減少を示し、清浄 Ni 表面が得られた。また、還元速度の温度依存から、H₂ 雰囲気中の還元律速反応の温度依存性を発見した。講演では、還元速度の H₂ 圧力依存および酸化還元反応中の Ni 酸化状態についても報告する。

[1] L. Vattuone, Y. Y. Yeo, D. A. King, J. Chem. Phys. **104**, (1996) 8096.

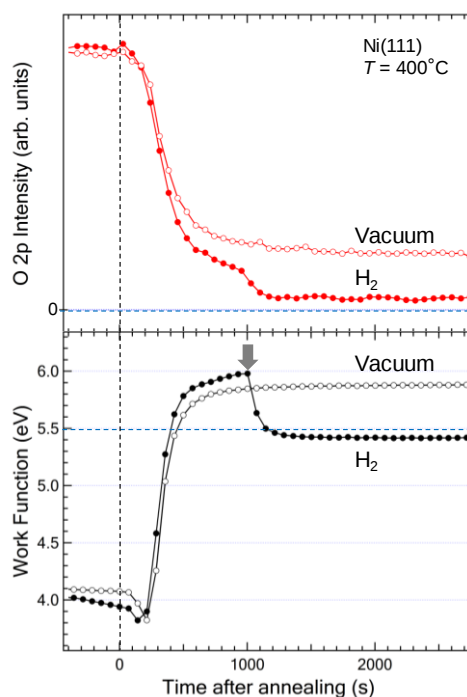


Fig.1 Time dependence of O 2p intensity and work function on oxidized Ni(111) surfaces during annealing in vacuum and H₂.