

遷移金属酸化物ナノシート超薄膜を用いたメタン酸化反応の電氣的モニタリング

Electrical monitoring of methane oxidation with ultrathin films
of transition metal oxide nanosheets大阪府大院工¹, 信州大繊維², JST さきがけ³ ○石原 良晃¹, 杉本 渉², 野内 亮^{1,3}Osaka Prefecture Univ.¹, Shinshu Univ.², JST-PRESTO³○Yoshiaki Ishihara¹, Wataru Sugimoto², Ryo Nouchi^{1,3}

E-mail: r-nouchi@pe.osakafu-u.ac.jp

1. 序論

メタンは有用な化成品を得る原料分子として有望視されており、その第1段階として非常に安定な C-H 結合を切る酸化反応が重要となる。そのような炭化水素酸化活性を有する物質として、 IrO_2 のような遷移金属酸化物が知られている。酸化反応は電子の授受を伴うため、電氣的手法で簡易に反応の観測ができると期待されるが、金属的性質を有する IrO_2 のバルクの電氣伝導度にマスクされてしまい、表面における酸化反応の検出は困難であった。これに対し本研究では、原子レベルの薄さを有する IrO_2 ナノシート薄膜を用いることで、メタン酸化反応の電氣的モニタリングに成功した。

2. 実験方法

IrO_2 ナノシート分散液を用いた交互積層法により、 SiO_2/Si 基板上に IrO_2 ナノシート薄膜を形成した。その後、分散剤等の有機不純物除去のために、大気中において 200°C で 1 時間加熱した。その上に、電極間距離 $50\ \mu\text{m}$ の Au 電極を真空蒸着により形成した。素子構造を Fig. 1 に示す。メタン暴露による電氣抵抗変化の測定は、窒素フロー下・ 200°C で行った。

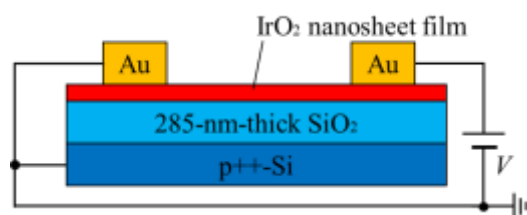
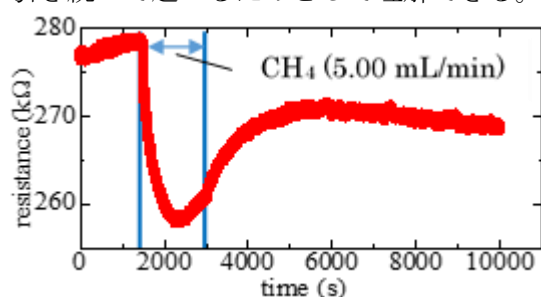
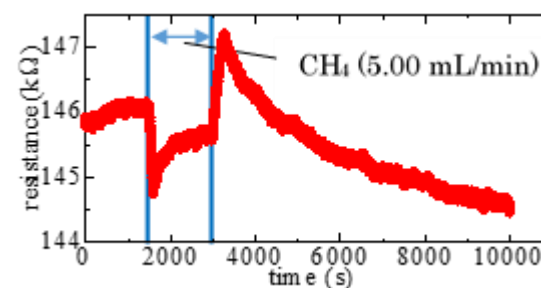


Fig. 1. Structure of a measured sample.

3. 結果と考察

Fig. 2、Fig. 3 にそれぞれ窒素のみ及び微量の酸素を含む窒素のフロー下におけるメタン曝露時の電氣抵抗の変化を示す。Fig. 2 において、メタン曝露による抵抗減少が観測されており、これは酸化反応に伴ってメタンから IrO_2 へ電子が移動したことによると考えられる。これに対し Fig. 3 のように酸素も含む雰囲気では、メタン暴露直後の抵抗減少に引き続いて抵抗増大が観測されているが、これは、メタンにより消費された格子酸素を回復させる酸化反応が引き続いて起こるためとして理解できる。

Fig 2. Time evolution of the electrical resistance of the IrO_2 nanosheet film in N_2 (400 mL/min).Fig 3. Time evolution of the electrical resistance of the IrO_2 nanosheet film in N_2 (400 mL/min) + O_2 (2 mL/min).