

SrFeO_x エピタキシャル薄膜表面における水素スピルオーバーの観測

Observation of hydrogen spillover phenomena on SrFeO_x thin films

京大化研¹

[○]鎌田太郎¹, 菅大介¹, 島川祐一¹

ICR, Kyoto Univ.

[○]T. Kamada¹, D. Kan¹, Y. Shimakawa¹

E-mail: kamada.tarou.48w@st.kyoto-u.ac.jp

水素スピルオーバーは、金属触媒の表面で生成した水素原子が触媒担体へと表面拡散する現象である。この現象は様々な触媒反応における反応機構として重要な役割を担っていると考えられてきたが、水素原子は実験的に観測することは容易ではなく、触媒担体上での水素の拡散距離など、スピルオーバーに関連した水素の振舞いはよく分かっていない。本研究では、酸素欠損型ペロブスカイト鉄酸化物 SrFeO_x (SFO, $x \sim 2.8$)において、SFO は還元されると、その電気抵抗率が酸素量の減少によって増加することに着目し、SFO エピタキシャル薄膜上での水素スピルオーバーを調べた。

SFO 薄膜(厚さ 50 nm)はパルスレーザー堆積法により(100)SrTiO₃ 基板上に作製した。Figure 1 に示すように、SFO 薄膜上に、棒状の Pd 触媒(幅 10 μm 、厚さ 10 nm)を室温にてスパッタ蒸着した。作製した Pd/SFO 試料を 1% H₂/Ar ガス中 140°C でアニールすることで水素スピルオーバーを誘起した。

Figure 1 は、Pd/SFO 試料のアニール前後の X 線回折パターンである。アニール処理後の(002)SFO 反射位置はアニール前のそれとほとんど同じであり、アニール処理で SFO 薄膜構造は変化していないことが分かる。Figure 2 は、Pd/SFO 試料における SFO 薄膜の電気抵抗を Pd 触媒からの距離に対してプロットしたものである。電気抵抗は Pd 触媒から約 500 μm の領域において触媒に近いほど増加することがわかった。このような電気抵抗の振舞いは触媒のない SFO 薄膜では観測されなかった。これらの結果は、水素スピルオーバーによって触媒近傍での SFO 表面は還元されて電気抵抗が上昇したと理解でき、スピルオーバーに関連する水素の到達距離は数百 μm に及ぶことがわかる。

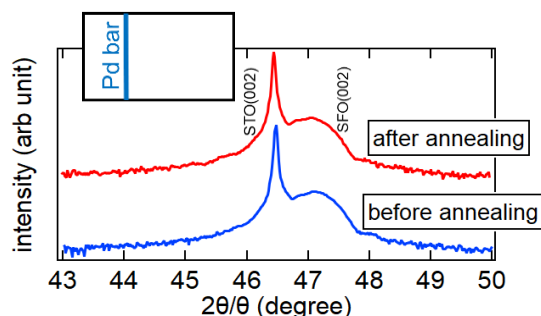


Figure 1: X-ray diffraction patterns of SFO films with Pd bars before and after H₂ annealing

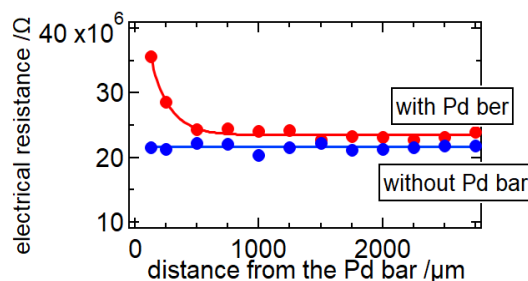


Figure 2 Electrical resistance of H₂-treated SFO films with (red) and without (blue) the Pd bar as a function of the distance from the Pd bar. The lines are a guide for eyes.