

準大気圧 XPS による Rh(111)表面上における NO+CO 反応の観察 Operando observation of NO + CO reaction on Rh(111) surface by NAP-XPS

上田 昂平^{1,*}, 吉田 真明¹, 伊勢川 和久¹, 白幡 尚生¹, 増田 志歩¹, 間瀬 一彦^{2,3}, 近藤 寛¹

¹慶應義塾大学, 〒223-8522 横浜市日吉 3-14-1

²物質構造科学研究所, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

³総合研究大学院大学, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

Kohei Ueda^{1,*}, Masaaki Yoshida¹, Kazuhisa Isegawa¹, Naoki Shirahata¹, Shiho Masuda¹,
Kazuhiko Mase^{2,3}, Hiroshi Kondoh¹

¹Keio University, 3-14-1 Hiyoshi, Yokohama, 223-8522, Japan

²Institute of Materials Structure Science, Tsukuba, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

³SOKENDAI (The Graduate University for Advanced Studies), 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

1 はじめに

自動車の排ガスには窒素酸化物や一酸化炭素(CO)などの有害な物質が含まれており、これらはロジウム(Rh)などの白金族元素からなる三元触媒によって浄化される。しかしその触媒反応のメカニズムは不明なことが多い。本研究では Rh 上の一酸化窒素(NO)と CO の反応に着目し、その反応の詳細を調べるため、実際の反応環境に近い準大気圧(NAP)でのその場 X 線光電子分光(XPS)および四重極質量分析(QMS)測定を行った。

2 実験

実験は PF BL-13B にて行った。Ar⁺スパッタおよびアニールによって清浄化した Rh(111)単結晶をモデル触媒として用い、NOおよびCOを50 mTorrずつ導入し、約2.5 °C/minで昇温しながら連続的にXPSおよびQMS測定を行った。XPS測定では入射エネルギーを640 eVに固定してC 1s, Rh 3d_{5/2}, N 1s, O 1s領域を測定した。また、同位体¹³COを使いQMS上でCOとN₂およびCO₂とN₂Oを区別できるようにした。

3 結果および考察

Fig. 1は触媒活性の様子である。300 °CでNOおよびCOが減少し、N₂やCO₂、N₂Oが生成していることから触媒が活性になったことがわかる。Fig. 2はN 1s領域のXPSである。活性前の室温付近では、Rh(111)表面上にはNOおよびCOが分子状で吸着していた。温度を上げると、200 °C付近で一部のNOおよびCOが脱離した。Rhが触媒活性を発現した300 °Cにおいて、NOが減少し始めると同時にNOが解離したことによる原子状吸着Nが現れた。このことから、この反応はNOの解離をきっかけとして起こることがわかった。また、活性になっている300 °C以上の温度領域ではCOも吸着しておらず、Rh表面には主に原子状Nのみが吸着していた。

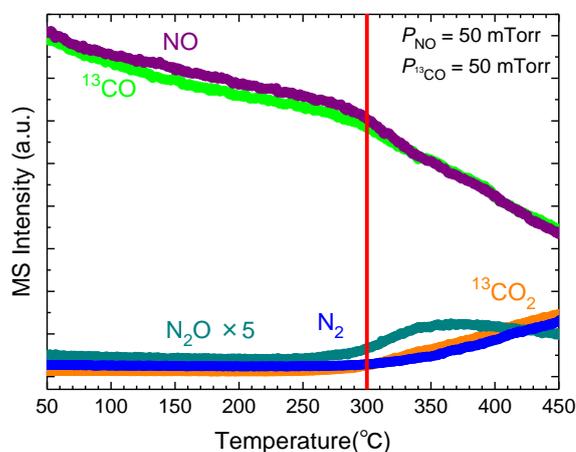


Fig. 1 反応物および生成物の QMS 強度

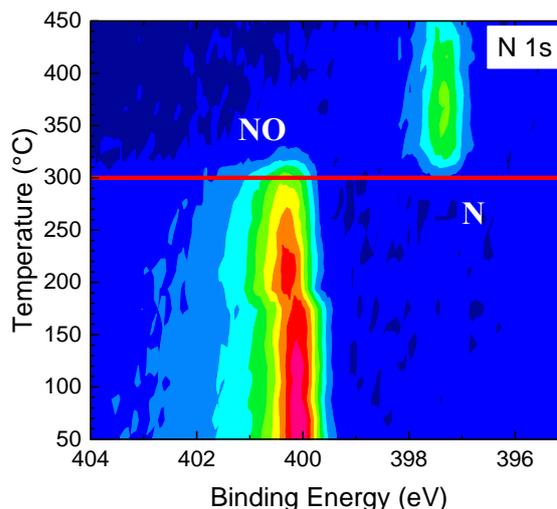


Fig. 2 N 1s 領域における昇温時の XPS 等高線図

* k.ueda@chem.keio.ac.jp