

## dispersive-NEXAFS を利用した Ir(111)表面上における CO-NO 反応の研究

中本 秀一<sup>A</sup>、阿部 仁<sup>A</sup>、小宇佐 友香<sup>A</sup>、原田 大雅<sup>A</sup>、  
隅井 良平<sup>B</sup>、雨宮 健太<sup>B</sup>、近藤 寛<sup>A</sup>  
<sup>A</sup>慶應大理工、<sup>B</sup>KEK-PF

イリジウムは酸素雰囲気下においても CO による NO 選択的還元の高い効率を示すことが報告されている。だが、イリジウムがこのような特性を持つ理由は不明であり、この反応機構の解明は触媒効率の向上において重要な課題である。本研究では、Ir(111)表面上に CO、NO および O<sub>2</sub> を導入し、波長分散型吸収端近傍 X 線吸収微細構造 (dispersive-NEXAFS)法および X 線光電子分光法 (XPS) を用いた反応表面種の観測から、NO 還元反応における酸素の影響を調査した。

実験は BL16A2 にて行った。変化の速いプロセスには高速測定(30 ms)が可能な dispersive-NEXAFS を用い、定常的な触媒反応プロセスについては、気相の反応ガスおよび生成ガスの分圧を四重極質量分析計 (Q-mass) でモニターし、そのときの表面状態を XPS で測定した。

図 1 に原子状酸素を飽和吸着させ、425 K、 $5 \times 10^{-8}$  Torr で CO を導入したときの dispersive-NEXAFS の時間変化の一例を示す。温度を変えて測定した結果を解析したところ、活性化エネルギーは 0.27 eV と低いものの前指数因子が非常に小さいため、速度定数は Pt(111)と比べて 400 K において 1/1000 程度であることが分かった。従って、CO 酸化反応による Ir の酸素除去能は相対的に低いと言える。次に、CO と NO を各々  $5 \times 10^{-8}$  Torr ずつ導入したときの触媒反応を XPS と Q-mass でその場観測した結果を見ると、XPS から原子状酸素と原子状窒素に由来するピークが観測され、NO が解離吸着していることが分かったが、その被覆率は飽和の 2 割以下であり、表面のかなりの部分は裸の Ir サイトに占められていた。それにもかかわらず、酸素を導入しても O 1s, N 1s XPS スペクトル共に変化は見られなかった。また Q-mass の結果から、酸素導入時に CO<sub>2</sub> として気相に出る量もわずかに増加するのみであることがわかった。これらのことは、CO-NO 反応進行中の Ir 表面へ酸素を導入しても、反応温度での酸素の吸着確率が低いために、触媒反応にほとんど影響を与えないことを示唆している。

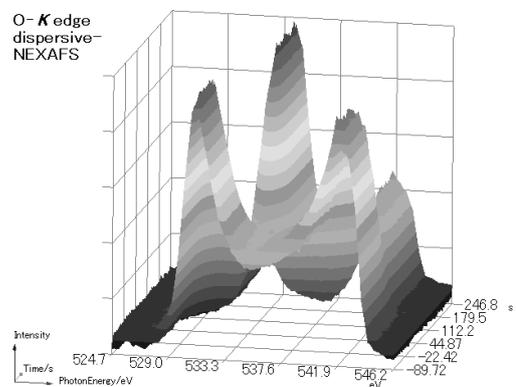


図 1. 酸素前吸着 Ir(111)上における 425 K、CO 導入圧  $5 \times 10^{-8}$  Torr での CO 酸化反応の dispersive-NEXAFS による追跡。