

軟 X 線 dispersive-NEXAFS 法で観る表面化学反応

近藤 寛・慶應義塾大学

X線を波長分散させて XAFS に利用する方法は PF の松下らによって考案され[1]、効率の良い XAFS 測定技術へと発展したが、軟 X 線領域の波長分散光を利用した表面 XAFS の高速測定技術も PF において開発されたものである[2]。硬軟両 X 線領域の波長分散(dispersive)XAFS 法は化学反応を調べるうえで有用な手法になっており、軟 X 線を用いた dispersive-NEXAFS 法は、固体表面で進む化学反応を表面反応種の側から見る方法として、表面化学反応の研究の新しいアプローチの一つになっている。本講演では、この手法が表面化学反応の理解にどのように寄与しているかということと、現在、どのような方向に発展しつつあるかということについて紹介させていただく。

表面化学反応の多くに見られる特徴は、固体表面上の反応種の反応性が必ずしも均一ではない点である。どのような吸着サイトに吸着しているか、吸着種が作る構造のどこに位置しているかによって反応性が大きく変わりうる。このことは表面反応の理解を難しくしていると同時に面白くしている点でもある。この反応の不均一性は反応のキネティクスの様々なところに現れてくるはずである。反応キネティクスを調べるためには、生成種だけでなく、反応種や中間体も含めた表面のすべての吸着種の挙動を追跡することが必要である。高速かつ高感度で表面吸着種を捉えられる Dispersive-NEXAFS はこのような実験に向けた手法である。実際、幾つかのよく知られた触媒反応が進行する表面の吸着種をこの手法で追跡してみると、吸着種自身の集団が作り出す構造が反応に極めて重要な役割を果たしている様子が見えてくる。触媒反応において触媒構造の重要性は言うまでもないが、その上に吸着した吸着種側の集団構造も実は決定的に重要な場合があることを、軟 X 線による吸着種の直接的観測を通して垣間見ることができる。

一方で、これまでのこの手法では表面反応を調べるうえで不十分に感じられる面もある。例えば、従来法に比べて高速とは言え、時間分解能の制約で低温・低圧下でのかなり遅い表面反応しか見ることができない。より実用触媒の反応条件に近い環境での実験を目指して、現在、改良を進めているところである。改良した手法による最近のデータと今後の発展の方向性についても触れる。

参考文献

- [1] T. Matsushita, R. P. Phizackerley, *Jpn. J. Appl. Phys.* **20**, 2223 (1981).
- [2] K. Amemiya, H. Kondoh, T. Yokoyama, T. Ohta, *J. Elec. Spectrosc. Relat. Phenom.* **124**, 151 (2002).