Measurement of the reaction probability of H₂ on the surface of Nd

Nd 表面の水素反応確率の測定

Shoichi TERADA, Masahiro HADANO, Nobuaki URUSHIHARA and Hirohisa UCHIDA

Department of Applied Physics, Tokai University, 1117 Kita-kaname, Hiratsuka, Kanagawa, 259-1292 Japan

TEL: 81-463-58-1211 (EXT. 4136), FAX: 81-463-58-9461

(Received 14, November 1998 Accepted 12, June 1999)

The absorption kinetics of H₂ with Nd was investigated using a volumetric method under ultra high vacuum. The change in the reaction probability, r as a function of absorbed H amount, N for the Nd-H₂ system was compared with those for the La-H₂ and Ce-H₂ systems. We investigated the correlations between r - N curves and equilibrium property of the Nd-H system relations at 298K.

Keywords: Nd, Reaction probability, Ultra high vacuum

I. INTRODUCTION

希土類系水素吸蔵合金としてミッシュメタル-ニッケル多元合金が開発されている。しかしミッシュメタルはその組成によって合金の特性が変化することが知られている。本研究室ではその主成分であるLa、Ceの水素反応特性について報告してきた。^{1,2} ミッシュメタルには、Ndも多く含まれているので、本実験では更にNdの水素反応特性について調べ、La、Ceの特性と比較した。また、298Kにおける圧力-組成-温度特性との相関について検討した。

II. EXPERIMENTAL

薄膜試料の残留ガスによる汚染の影響を少なくするため、装置全体の脱気、イオンゲージ、ブロック試料の脱ガスを繰り返し系内を超高真空 (5×10^{-8} Pa) にし、反応管内壁に抵抗加熱法で純度99.9%のNdを100nm蒸着させた。その後反応ガスをリザーバー、キャピラリーを通して反応管に導入し、試料との反応性を調べた。その時のリザーバー、反応管の圧力、キャピラリー管のコンダクタンスから容量法を用いて反応確率 r 、反応量 N を求めた。³ 反応ガスは7Nの水素ガスをPdセルで精製し、更に液体窒素トラップを通し高純度化したものを用いた。

III. RESULTS AND DISCUSSION

Figure 1 及び Fig. 2 に 298 K における Nd、La、Ce の水素の反応量 N に対する反応確率 r の変化を示す。

Nd について、 $N = 1 \text{ ML}$ ($1 \text{ ML} \equiv 1 \times 10^{15} \text{ molecules cm}^{-2}$) の反応初期において反応確率は $r = 1$ となったが、その後反応性は $r = 10^{-1}$ 台へと急激に低下した。これはNd表面で水素化物層が形成されたため水素分子の解離や水素原子の水素化物層の透過が容易でなくなったためと思われる。¹ Table 1 の 298 K における二水素化物の平衡圧力から、水素分圧が 10^{-8} Pa 台の反応初期でもNd表面には容易に水素化物層が形成されることが考えられる。 $N < 300 \text{ ML}$ まで水素吸収量増加に伴って反応確率は緩やかに減少した。この領域では水素固溶相と二水素化物相が共存していると考えられる。^{4,5} 反応量が300MLを超えると反応確率は急激に減少したが、これはNd表面及び内部に非金属的な二水素化物が形成されたため、水素分子と相互作用し、分子を解離するために必要な電子が少なくなり、水素分子の解離が阻害されたためと思われる。⁶

FIG.1. Changes in the reaction probabilities r as a function of the H₂ amount N_{H_2} absorbed by Nd, La and Ce at 298K.

FIG.2. Changes in the reaction probabilities r as a function of the H_2 amount N_{H_2} absorbed by Nd, La and Ce at 298K in the range of $N_{H_2} < 3 \times 10^{15}$ molecules cm^{-2} .

TABLE1. The H_2 equilibrium pressures (Pa) of the dihydrides of neodymium, lanthanum and cerium at 298K

NdH_2	LaH_2	CeH_2
3×10^{-25}	6×10^{-25}	2×10^{-22}

膜厚 100 nm の Nd、La、Ce 薄膜において、それぞれ初期反応確率は $r = 1$ を示した。また水素固溶相と二水素化物相が共存していると考えられるプラトー領域の反応確率は、Ce が Nd、La と比較して低い値を示した。この二相共存領域の反応確率の違いがミッシュメタルの組成の違いによる水素化物形成の反応速度に影響すると考えられる。

REFERENCES

- ¹ N. Hosoda, Y. Ohtani, T. Takahashi and H. Uchida, Z. Phys. Chem. N. F., 164, 1129 (1989)
- ² M. Hadano, N. Urushihara, T. Inoue and H. Uchida, presented at Int. Symp. on Metal-hydrogen System, China, October (1998)
- ³ E. Fromm and H. G. Wult, J. Less-Common Met., 101, 469 (1984)
- ⁴ H. Uchida, Y. C. Huang, M. Tada and K. Fujita, Z. Phys. Chem. N. F., 114, 53 (1979)
- ⁵ K. Toguchi, M. Tada and Y. C. Huang, J. Less-Common Met., 88, 469 (1982)
- ⁶ T. Suzuki, T. Kawahata and H. Uchida, Z. Phys. Chem., 181, 423 (1993)

Presented at '98 SAS Intelligent Symposium