

課題番号 :2023B-E04
利用課題名 (日本語) :In-situ XAFS による貴金属担持セリア系複合酸化物の酸素吸蔵放出機構の研究(1)
Program Title (English) :Investigation of oxygen storage/release dynamics in a PGM loaded CeO₂-based complex oxide environment by in-situ XAFS.
利用者名(日本語) :田中裕久¹⁾, 澤田大²⁾, 三浦拓³⁾, 松村大樹⁴⁾ 辻卓也⁴⁾
Username (English) :H. Tanaka¹⁾, D. Sawada²⁾, T. Miura³⁾, D. Matsumura⁴⁾, T. Tsuji⁴⁾
所属名(日本語) :1) 関西学院大学大学院理工学研究科, 2) ダイハツ工業株式会社,
3) 株式会社キャタラー, 4) 日本原子力開発機構

キーワード : **Exhasut gas catalyst, Cerium oxide, Oxgen storage/release, X-ray absorption spectroscopy**

1. 概要 (Summary) 目的・用途・実施内容

自動車排気浄化システムにおける触媒劣化検出の精度向上に向けて、貴金属担持セリア系複合酸化物の酸素吸放出(OSC)機構を時間分解in-situ DXAFS により解明定量化することを目的に実施した。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

担持貴金属量・種(Pt,Pd,Rh)・担体材料組成(Ce,Zr,Y)の異なるセリア系複合酸化物にて、酸化又は還元ガス流入中の Ce 及び貴金属元素の価数変化とその温度依存性を、時間分解in-situ DXAFS により観測した。光学系は分散型光学系として Si (422) 結晶を湾曲させたポリクロメータを Laue 配置し、Ce K-edge エネルギーを持つ X 線を約 250eV 幅で検出した。試料は Operando Cell に圧入し、X 線、ガス共に試料厚み方向を貫通する配置とした。反応ガスは 100sccm にて 5%水素と 5%酸素 (N₂,He バランス) を 100 秒ごとに交互に切り替え流通した。

3. 結果と考察(Results and Discussion)

セリアにおける酸化還元ガス流入時の Ce⁴⁺⇌Ce³⁺価数変化挙動において、Ce 酸化は速いが、Ce 還元は遅い非対称性があり、低温ほどその差は顕著であった。酸素放出が全体の OSC 反応を律速していると思われた。この遅い酸素放出に対するドーバント効果検証により、Zr や Y が Ce 還元速度・量を向上させることが分かった。更に、担持貴金属種の検証を行ったところ、Pt や Pd 担持により Ce 還元速度は高速化される一方、Rh では遅延化傾向が確認された。各貴金属吸収端の価数変化挙動より、貴金属自体の価数変化が先行し Ce との競争還元反応が生じていることが推測された。

4. その他・特記事項 (Others)

謝辞：日本原子力開発機構 松村大樹博士・辻卓也博士のご支援に感謝申し上げます。