

同位体可視化に基づく Pd/CeO₂-ZrO₂ 触媒の酸素吸蔵・放出サイトと輸送経路に関する考察

(東京科学大) 長澤剛, 渡辺侑希, 徳増優志

1. 研究背景

ガソリン車に広く用いられる三元触媒は、酸素吸蔵材による酸素の吸放出を伴うことで、過渡的に空燃比が変化する状況下など、量論混合比から外れた際にも高い浄化率が維持される。触媒性能の向上や劣化の抑制を目指す上で上記反応機構の解明は重要となるが、これは表面反応と吸蔵材内部/表面の酸素移動が絡み合った複雑なものとなる¹⁾。筆者らは酸素吸蔵・放出機構の解明とモデリングを目的として、同位体ラベリングと高温反応のクエンチを組み合わせた手法によるモデル三元触媒内の酸素吸蔵分布可視化に取り組んでいる²⁾。本報告においては、CeO₂-ZrO₂ (CZ) 緻密基板上に Pd を塗布したモデル触媒を用い、複数の条件における酸素同位体分布の可視化から、Pd/CZ 触媒における酸素放出・吸蔵機構を提案した。

2. 研究内容

図 1 に本研究の流れを示す。図 1 左は、モデル触媒から水素還元にて酸素を放出させたのち、一定時間 ¹⁸O₂ を吸蔵させ、クエンチした後に二次イオン質量分析計にて得た表面の ¹⁸O 濃度分布の一例である。Pd/CZ 界面近傍にて高い ¹⁸O 濃度領域の形成が観察される。本研究では複数の温度、酸素放出時間、および酸素吸蔵時間における表面および断面可視化画像を取得すると共に、条件ごとの ¹⁸O 濃度プロファイルの比較 (図 1 中央) を行ったところ、Pd/CZ 触媒における酸素吸蔵・放出サイトおよび酸素輸送経路は PdO 層の有無と温度範囲に応じて変化することが明らかとなった。得られた知見を基に、温度と PdO 層の有無、および CZ 内酸素空孔分布の変化に応じた酸素放出・吸蔵メカニズムを提案した (図 1 右が一例)。

文献

- 1) M. Machida et al., *ACS Catal.* **9**, 6415 (2019).
- 2) T. Nagasawa et al., *Chem. Eng. J.* **453**, 139937 (2023); H.M. You et al., *Appl. Surf. Sci.* **648**, 159045 (2024).

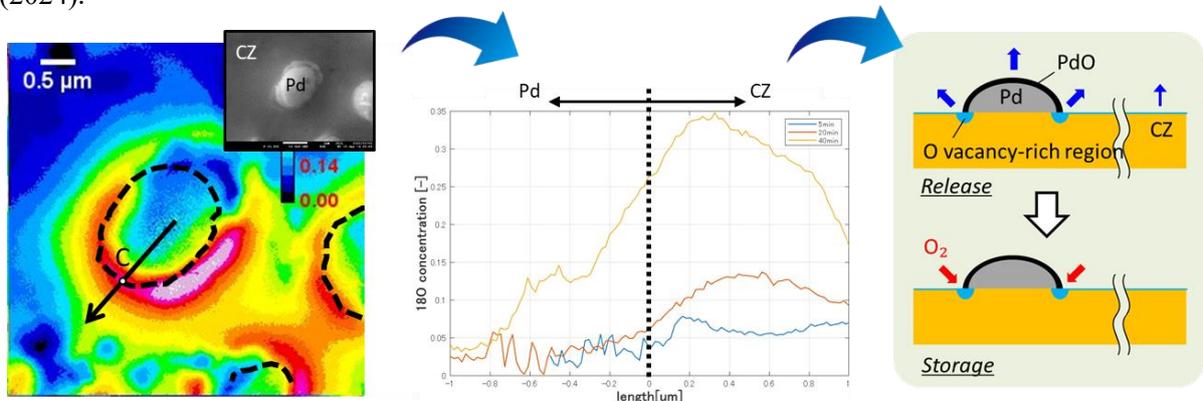


図 1 Pd/CZ モデル触媒表面の ¹⁸O 濃度分布、ラインプロファイル、および酸素放出・吸蔵メカニズムの一例