



## 金属酸化物触媒の結晶構造解析

富中 悟史

国立研究開発法人物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクトニクス研究拠点

キーワード：金属酸化物、結晶構造解析、電極触媒、ジルコニウム酸窒化物

### 1. 背景と研究目的

ジルコニウム酸窒化物は、燃料電池の酸素還元反応に対して触媒活性を示すことが石原らによって報告されており<sup>[1,2]</sup>、白金を全く使用しない触媒として大きな可能性を秘めている。実用触媒としての利用を目指して活性を追求する研究では、原子配置を正確に理解する構造解析が不十分であり、その触媒活性の本質的な理解へはたどり着いておらず、別のアプローチが必要である。本研究では前駆体から高度に制御した反応経路で、精密に制御した酸窒化物を合成し、その触媒活性と構造の相関を議論することで本質的な理解へ繋げることを目的とし、放射光 X 線回折データの収集と解析を行った。

### 2. 実験内容

粉末試料をリンデマンガラスのキャピラリー（0.2 mm φ）に充填し、あいち放射光の BL5S2 の粉末回折計を用いて、透過配置において二次元半導体検出器（PILATUS 100K、4 連装）と放射光 X 線（ $\lambda = 0.799848 \text{ \AA}$ ）を用いて、カメラ長 340 mm にて 0.08 から 95 度まで回折データの収集を行った。サンプルと同様に空のキャピラリーを測定し、バックグラウンドデータとした。標準試料として同径のキャピラリーに疎に充填した  $\text{CeO}_2$  を用いて、リートベルト解析の標準とした。リートベルト解析は TOPAS プログラムを用いて行った。

### 3. 結果および考察

ジルコニウム酸窒化物は単相で合成するのが比較的難しい物質であり、今回のサンプルでも  $\beta$  相や  $\gamma$  相の混合物であることが Fig. 1 に示すように高分解能の XRD パターンの解析から分かった。系統的な合成に対し、結晶構造情報がクリアに分かるデータが得られ、リートベルト解析から、単相の合成条件が分かりつつある。詳細は触媒活性と併せて論文発表を行う予定である。

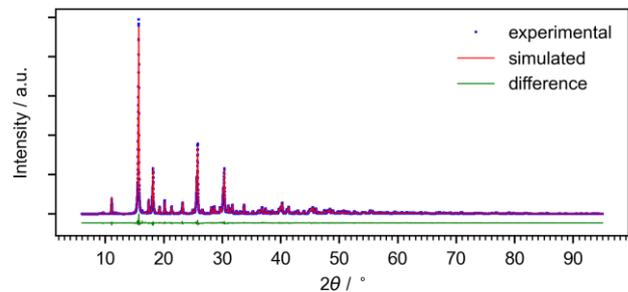


Fig.1 Rietveld refinement result for the XRD pattern of zirconium oxynitride sample.

### 4. 参考文献

- [1] Y. Maekawa, A. Ishihara, J. H. Kim, S. Mitsushima, K. I. Ota, Catalytic activity of zirconium oxynitride prepared by reactive sputtering for ORR in sulfuric acid. *Electrochem. Solid State Lett.* 11, B109–B112 (2008).
- [2] S. Doi, A. Ishihara, S. Mitsushima, N. Kamiya, K. I. Ota, Zirconium-based compounds for cathode of polymer electrolyte fuel cell. *J. Electrochem. Soc.* 154, B362–B369 (2007).