



炭素循環社会実現に資する原子スケール触媒設計及び構造解析

大津岳士，原田清宇，薩摩篤
名古屋大学

キーワード：環境触媒，地球温暖化，亜酸化窒素

1. 背景と研究目的

地球温暖化抑制のため，炭素循環社会の実現が目指されている．CO₂ 排出フリーなエネルギーキャリアとして NH₃ が注目されている．しかし，NH₃ は燃焼に伴って有害な NO_x や N₂O を副生する．特に N₂O は温室効果係数が CO₂ の約 300 倍であり，微量の排出でも地球温暖化への寄与が大きいため排出抑制技術が求められている．N₂O 直接分解触媒では，Rh 触媒が高い活性を示すことが知られている．¹ また，Rh 触媒ではゼオライトやメソポーラスシリカなどの多孔質材料が担体に適することが報告されている．^{2,3} 近年，Wang らは MFI 型構造を有する Silicalite-1 に Rh ナノ粒子を内包した Rh@S-1 が優れた N₂O 分解活性を示すことを報告した⁴ が，その発現要因は明らかではなかった．本研究では排ガス中の N₂O 分解で求められる過剰酸素雰囲気における，Rh@S-1 触媒中の Rh 状態を XAFS 測定と HAADF-STEM 観察から明らかにして触媒設計指針の確立を目指した．

2. 実験内容

Rh のエチレンジアミン錯体溶液をゼオライト合成ゲルと混合し，水熱合成することで Rh@S-1 を調製した（Rh 0.6 wt%）．比較触媒として Rh@S-1 に合わせて 0.6 wt% 相当の Rh を各種担体に担持したものも調製した．N₂O 分解活性試験では触媒 50 mg を 16% O₂/Ar 流通下 200-500℃ で 10 分前処理後，N₂O 1000 ppm, 16% O₂/Ar (100 mL/min) で実施した．

3. 結果および考察

活性試験結果では Rh@S-1 は Rh/S-1 と比較して過剰酸素雰囲気でも高い N₂O 分解活性を示した．また SiO₂, ZrO₂, CeO₂, TiO₂, Al₂O₃ を触媒担体として用いた場合や，Fe, Co, Ni, Cu, Ru, Pd, Ag, Re, Ir, Pt を内包した S-1 では Rh@S-1 を上回る活性を示さなかった．

Fig.1 に Rh@S-1 と Rh/S-1 の HAADF-STEM 観察像と FT-EXAFS の結果を示す．Rh@S-1 は sub-2 nm の均一な Rh ナノ粒子を内包していることにに対し，Rh/S-1 では粒子径分布が不均一であった．また，FT-EXAFS から Rh@S-1 と Rh/S-1 における Rh-Rh シェルと Rh-O-Rh シェルの相対強度比が変化しており，Rh 粒子の内包による電子状態の変化が高活性の発現要因に寄与していることが示唆された．

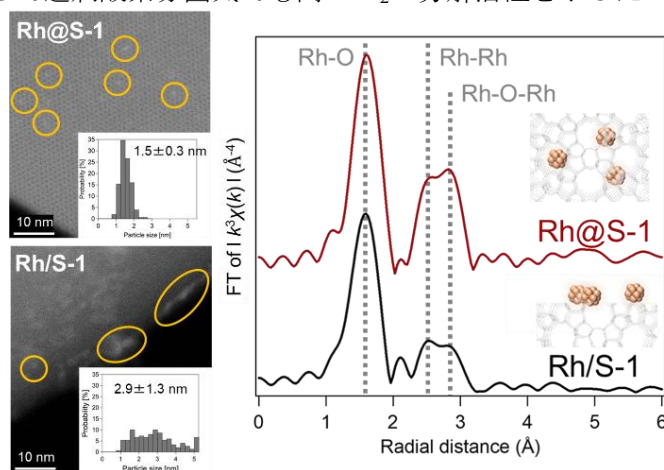


Fig.1 HAADF-STEM 観察像と FT-EXAFS. ($3 < k < 12$)

4. 参考文献

- 1 X. Wu et al., *Chem. Soc. Rev.* **2024**, 53, 8379.
- 2 M. Piumetti et al., *Appl. Catal. B Environ.* **2015**, 165, 158.
- 3 K. Yuzaki et al., *Catal. Today* **1998**, 45, 129.
- 4 S. Wang et al., *Eur. J. Inorg. Chem.* **2021**, 2201.