

# *In situ* XAFS 測定による La-Ni 系酸化物触媒の活性点構造の解明

永長 久寛

九州大学総合理工学研究院

本研究では、貴金属代替触媒の開発を目的として、La-Ni 系酸化物触媒の CO 酸化特性について検討した。水酸化テトラメチルアンモニウムを沈殿剤とした加水分解法により調製した LaNiO 酸化物ペロブスカイト型構造を有することを XRD、XAFS により確認した。同触媒は酸素の低濃度条件において他金属種を B サイトに有する LaMO<sub>3</sub> (M = Mn、Co) よりも高い CO 酸化活性を示した。Ni を過剰に添加して LaNiO<sub>3</sub> 表面に NiO を析出させることで CO 酸化活性が向上し、LaNi<sub>1.1</sub>O<sub>3</sub> は 5wt%-Pt/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> よりも高い定常活性を示した。同試料の H<sub>2</sub>-TPR プロファイルでは、3 つの還元ピークが観測され、低温側の還元ピークが LaNiO<sub>3</sub> のプロファイルと比較して低温側にシフトした。高活性化に寄与する触媒の酸化・還元サイトについて明らかにするため、300°C で水素ガス気流を導入した際の各試料の構造変化を *in situ* Ni K-EXAFS により追跡したところ、LaNiO<sub>3</sub> の Ni K 吸収端 EXAFS スペクトルではピークの変化がみられなかったものの、LaNi<sub>1.1</sub>O<sub>3</sub> では時間の経過とともに Ni-O のピークが減少しており、ペロブスカイト相の表面・格子酸素の量が減少していることがわかった。従って、NiO-LaNiO<sub>3</sub> の異相界面の形成によりペロブスカイト層の表面格子酸素の反応性が向上するものと考えられる。