セリア-ジルコニア固溶体の酸素吸収挙動と酸素欠陥

株式会社豊田中央研究所 佐々木 巖**** 右京 良雄*
 名古屋大学理工科学総合研究センター 荒井 重勇**
 名古屋大学工学研究科 黒田光太郎*** 坂 公恭****

Fig. 2 $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_{7+x}$ の電子線回折および HREM 像. $x = 0$ (a), 0.5 (b), 1 (c). a は単位格子の長さ, d は周期性の長さを示す.

パイロクロア構造の $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_{7+x}$ ($0 \leq x \leq 1$) は良好な酸素吸放出能力を有するため, 自動車排気ガス浄化用の助触媒として注目されている. この材料の酸素吸収に伴う構造変化を HREM によって観察した. Fig. 1 の熱質量分析に示されるように, この材料は 2 段階で酸素吸収反応が進行する. 共沈法で合成した $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_{7+x}$ 粉末試料を (a) $x = 0$, (b) $x = 0.5$, (c) $x = 1$ の状態に調整し⁽¹⁾, HREM 観察した結果を Fig. 2 に

Fig. 1 $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_{7+x}$ の酸素吸収特性.

Fig. 3 Pt を担持した $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_{7+x}$ の酸素吸収過程における HREM 像. (a) 照射直後, (b) 5 分後.

示す. これらは明らかに異なる結晶相であり, (b) では空間群 $F\bar{4}3m$ に属する中間相が存在していることを見出した⁽¹⁾. これは酸素欠陥が新たな規則配列性を示すためである. この HREM 像の明瞭な違いはこの材料の局所的な酸素吸収を観察することに利用できる.

Fig. 3 には Pt を担持した $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ が電子線照射時に酸素を吸収する過程の HREM 像を示す. 照射直後 (a) はすべて Fig. 2 (a) の状態である $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 相であるが, 5 分後 (b) には Pt 近傍から酸素を吸収し, Fig. 2 (b) の状態である $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_{7.5}$ 相が生成していることが HREM 像から推測できる.

文 献

- (1) T. Sasaki, Y. Ukyo, A. Suda, M. Sugiura, K. Kuroda, S. Arai and H. Saka: J. Ceram. Soc. Jpn., **111** (2003), 382-385.
 (2003年 8 月 20 日受理)

Oxygen Absorption Behavior and Oxygen Defect in CeO_2 - ZrO_2 Solid Solution; Tsuyoshi Sasaki****, Yoshio Ukyo*, Shigeo Arai**, Kotaro Kuroda***, Hiroyasu Saka**** (*Toyota Central R&D Labs., Inc., Nagakute-cho, Aichi. **Center for Integrated Research in Science and Engineering, Nagoya University, Nagoya. ***Department of Materials Science and Engineering, Nagoya University, Nagoya. ****Department of Quantum Engineering, Nagoya University, Nagoya)

Keywords: ceria-zirconia solid solution, ordering, oxygen storage

TEM specimen preparation: crushing in an agate mortar TEM utilized: H-9000 (300 kV)