

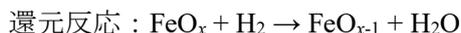
# FeO<sub>x</sub>-CeO<sub>2</sub> 球状多孔体のソルボサーマル合成とケミカルループ逆水性ガスシフト反応への応用

## Solvothermal Synthesis of FeO<sub>x</sub>-CeO<sub>2</sub> Porous Spheres and their Application to Chemical-looping Reverse Water-gas Shift Reaction

1245088 平栗 裕介  
Yusuke Hiraguri

### 1. 序論

酸化鉄 (FeO<sub>x</sub>) はレドックスサイクル (Fe<sup>2+</sup> / Fe<sup>3+</sup>) を示すことから、主に化学ループ反応に用いられる金属酸化物の一つである。一例として、FeO<sub>x</sub> を酸素キャリアとして利用する反応に、水素と二酸化炭素から水と一酸化炭素を選択的に生成する chemical-looping reverse water-gas shift reaction (以下、CL-RWGS 反応) がある。



この反応は高温 (600 °C) で行われるため、酸素キャリアの高温焼結による活性低下が問題となる。これを抑制する目的で異種金属酸化物と複合し、反応に用いられる。異種金属酸化物に酸化セリウム (CeO<sub>2</sub>) を用いれば、CeO<sub>2</sub> のもつ酸素吸蔵放出能により反応が効率よく進行することが知られている<sup>1)</sup>。しかし、これらの異なる結晶相同士の金属酸化物をナノレベルで均一に複合化することは、一般に、困難であるとされている<sup>2)</sup>。

本研究では、独自の一段階ソルボサーマル合成法<sup>3,4)</sup>を用いて、ナノレベルで均一複合した FeO<sub>x</sub>-CeO<sub>2</sub> 球状多孔体を合成し、高効率酸素キャリアとしての可能性を明らかにすることを目的とした。

### 2. 実験と結果

Fe(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·9H<sub>2</sub>O、Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O、安息香酸、ジエチレングリコール、メタノールからなる前駆溶液を加熱 (300 °C、10 min)、遠心分離、真空乾燥することで褐色粉末を得た。その後、電気炉で焼成 (600 °C、180 min) することで酸素キャリア Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CeO<sub>2</sub> 球状多孔体を得た。STEM-EDX 分析より、得られた粒子は直径約900 nm の球状粒子であり、Fe 元素と Ce 元素は均一に分布していた (図1a)。比較のため、酸化鉄と酸化セリウムを物理混合した。自転公転ミキサーにより酸化鉄 (Sigma-Aldrich) と酸化セリウム (JRC-CEO-1) を混合し、赤褐色粉末を得た。同様に焼成し、酸素キャリア Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CeO<sub>2</sub> 混合物を調製した (図1b)。これらの酸素キャリアを用い、CL-RWGS 反応を行った。還元反応・酸化反応の組み合わせを1サイクルとして、これを10サイクル繰り返した。得られた H<sub>2</sub> 消費量と CO<sub>2</sub> 消費量、CO 生成量のグラフを図2に示す。結果として、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CeO<sub>2</sub> 球状多孔体は Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CeO<sub>2</sub> 混合物に比べ、高い H<sub>2</sub> 消費量と CO<sub>2</sub> 消費量、CO 生成量を示した。

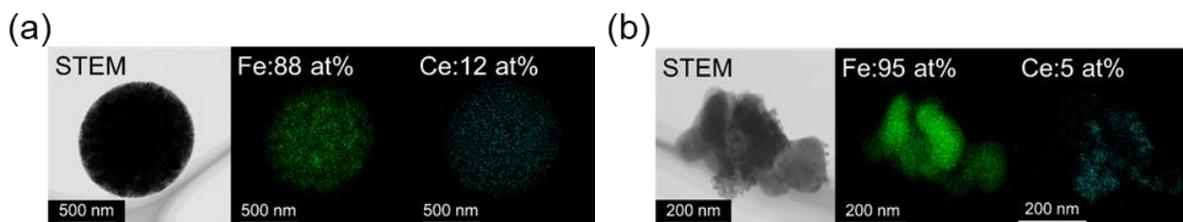


図 1. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CeO<sub>2</sub> 球状多孔体 (a) と Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CeO<sub>2</sub> 混合物 (b) の STEM-EDX 画像。

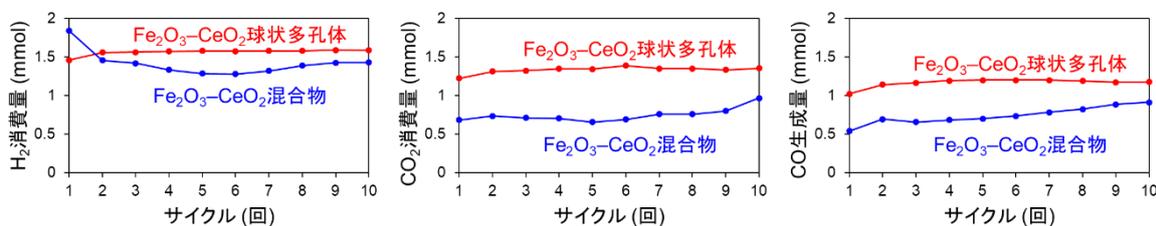


図 2. CL-RWGS 反応の H<sub>2</sub> 消費量、CO<sub>2</sub> 消費量、CO 生成量のグラフ。

### 文献

- 1) S. Isogai *et al.*, *Chem. Lett.*, **2013**, 42, 1438–1440.
- 2) V. V. Galvita *et al.*, *Ind. Eng. Chem. Res.* **2013**, 52, 8416–8426.
- 3) H. T. T. Nguyen *et al.*, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2017**, 3017–3023.
- 4) H. T. T. Nguyen *et al.*, *Microporous Mesoporous Mater.* **2019**, 273, 35–40.