

【緒言】

金属酸化物の液相合成法には、ゾル-ゲル法、沈殿法、ソルボサーマル法など様々な手法がある。中でもソルボサーマル法は、前駆溶液に使用する金属源、溶媒、添加剤の種類・使用量や反応温度・時間などの反応条件を適切に設定することで、生成物の大きさ、形状、物性などの制御が可能である。反応前駆体中の溶媒や添加剤は反応原料中の金属カチオンへの反応性や生成物の溶解度等を支配するため、反応の設計にあたってこれらの選択と組み合わせが極めて重要である。我々はこれまで、溶媒にエタノールを用いたソルボサーマル法により約 500 nm の大きさの異種酸化物複合 ZrO_2 の合成法を確立している¹⁾。また、非プロトン性溶媒であるアセトニトリルを用いたソルボサーマル法により Ce^{3+} サイトを多量に有する CeO_2 が得られることを明らかにしている²⁾。そこで本研究では、アセトニトリルを溶媒に用いたニトリルサーマル法により ZrO_2 , SiO_2 , Al_2O_3 , Y_2O_3 を複合した複合酸化物 CeO_2 の合成を行った。

【実験・結果】

$Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$, CH_3CN , C_2H_5OH (CH_3CN の体積に対し 10%) , トリエチレングリコール, $ZrO(NO_3)_2 \cdot 2H_2O$ (Zr は Ce に対し 10 at%) からなる前駆体溶液を加熱し (300 °C、10 min) , ZrO_2-CeO_2 複合体を得た。同様の手法を用いて SiO_2-CeO_2 , $Al_2O_3-CeO_2$, $Y_2O_3-CeO_2$ 複合体も合成した。蛍光 X 線分析の結果より、複合した元素と Ce の比は、得られたすべての粒子で、ほぼ仕込み比通りに存在していた。 CeO_2 の重要な物性である酸素貯蔵能を酸素パルス測定結果から算出したところ、 ZrO_2-CeO_2 , SiO_2-CeO_2 , $Al_2O_3-CeO_2$ は CeO_2 よりも最大 2 倍程度高い酸素貯蔵能を示した。しかし、 $Y_2O_3-CeO_2$ のみ、 CeO_2 よりも低い酸素貯蔵能を示したが、参照触媒 CeO_2 と比べると高い酸素貯蔵能を有していた。以上のことより、ニトリルサーマル法を用いて高い酸素貯蔵能を有する酸化物複合 CeO_2 の合成に成功した。

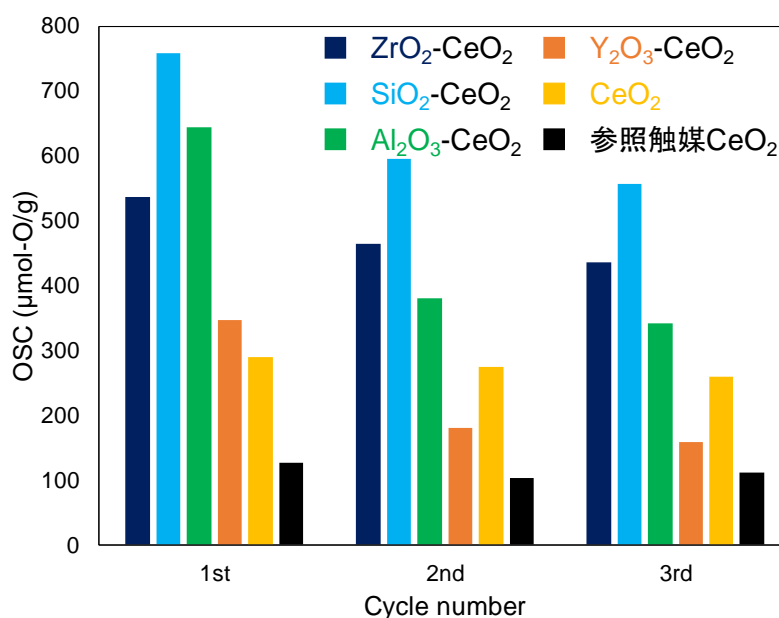


図 1 . Oxygen storage capacity (OSC) of CeO_2 composites and reference CeO_2 determined by cyclic O_2 pulse measurements at 400 °C.

文献

- 1) T. Nakayashiki et al., *Nanoscale Res. Lett.* **2022**, 17:47.
- 2) A. Taniguchi et al., *RSC Adv.* **2021**, 11, 5609–5617.