

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		鉄微粒子の高温酸化反応による CO <sub>2</sub> 固定化最適条件の特定と CO <sub>2</sub> 削減技術への応用			
研究テーマ (欧文) AZ		Optimum Fixation Conditions of CO <sub>2</sub> with Iron Fine Particles at High Temperatures and Application to CO <sub>2</sub> Reduction Technology			
研究氏代表名者	カナ CC	姓)	名)	研究期間 B	2006 ~ 2007 年
	漢字 CB	湯浅	三郎	報告年度 YR	2008 年
	ローマ字 CZ	yuasa	saburo	研究機関名	首都大学東京
研究代表者 CD 所属機関・職名		首都大学東京 大学院 システムデザイン研究科 ・ 教授			
概要 EA (600 字~800 字程度にまとめてください。)					
<p>Fe 微粒子と CO<sub>2</sub> とを特定の高温条件下で反応させると、Fe<sub>3</sub>C が生成され、その触媒作用によって炭素が生成されるが、その詳細な反応機構や反応条件は十分には明らかになっていなかった。本研究では、Fe 微粒子を CO<sub>2</sub> 及び CO<sub>2</sub>/CO 混合気中で高温反応させて質量と反応生成物の時間的変化を調べ、炭素の生成までの反応過程を解明することを試みた。併せて形成された炭素の特性を調べ、以下の結果を得た。</p> <p>○Fe微粒子とCO<sub>2</sub>との高温反応による酸化鉄/炭素生成機構</p> $3/4\text{Fe} + \text{CO}_2 \rightarrow 1/4\text{Fe}_3\text{O}_4 + \text{CO} \quad \text{①}$ $15/4\text{Fe} + \text{CO} \rightarrow 1/4\text{Fe}_3\text{O}_4 + \text{Fe}_3\text{C} \quad \text{②}$ $\text{CO} + \text{Fe}_3\text{C} \rightarrow 1/2\text{CO}_2 + 1/2\text{C} + \text{Fe}_3\text{C} \quad \text{③}$ <p>600 K~900 Kの温度範囲において、まず①の反応によってCOが形成され、CO<sub>2</sub>/CO中のCO濃度が80%を越えると②の反応が進行してFe<sub>3</sub>Cが生成される。さらに、生成されたFe<sub>3</sub>Cの触媒作用によって③の反応が進行し、炭素が生成される。この反応機構の総括反応は、</p> $21/2\text{Fe} + 4\text{CO}_2 \rightarrow 3/2\text{Fe}_3\text{O}_4 + 2\text{Fe}_3\text{C} + \text{CO}_2 + \text{C} \quad \text{④}$ <p>であり、初期に存在するCO<sub>2</sub>の75%を固定化することが理論的には可能である。また固定化されるCO<sub>2</sub>の割合はFeに対しては、0.286 mole<sub>CO2</sub>/mole<sub>Fe</sub>である。</p> <p>○Fe/CO<sub>2</sub>高温反応の反応速度</p> <p>Fe微粒子(平均粒径3.8 μm)とCO<sub>2</sub>との反応初期には温度範囲によらずCOが生成される反応が進行する。しかしこの反応機構は温度範囲によって異なり、主な固体生成物と総括的な活性化エネルギーは、低温範囲(600~900 K)ではFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>と約12 kJ/(mole・K)、高温範囲(900~1300 K)ではFe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>及びFeOと約54 kJ/(mole・K)である。初期反応終了後、低温範囲においてはCO<sub>2</sub>/CO混合気中のCO濃度が8割以上に達すると、②と③とが進行する。このとき、③の触媒反応の反応速度は約5x10<sup>-3</sup> mg<sub>C</sub>/(mg<sub>Fe</sub>・min)である。高温範囲ではFe<sub>3</sub>Cの生成は殆ど起こらず、結果として炭素の生成も低温時に比べて非常に遅い。</p> <p>○生成された炭素の特性把握</p> <p>反応生成物をSEMで観察し、X線回折によって物質特定を行った。その結果、低温範囲のCO雰囲気中で生成された炭素の中に、カーボンナノチューブが多く混在していた。</p> <p>○ゴミ焼却炉を対象にしたCO<sub>2</sub>固定化システムの検討</p> <p>Fe微粒子は、④に示された総括反応に従ってCO<sub>2</sub>を固定化できる。そのためには600~900 Kの高温雰囲気と初期のCO<sub>2</sub>雰囲気が反応の途中で高濃度のCO雰囲気に移行する反応システムが不可欠である。しかし④式で固定化されるCO<sub>2</sub>の割合は、Feに対しては0.286 mole<sub>CO2</sub>/mole<sub>Fe</sub> = 0.115 Nm<sup>3</sup><sub>CO2</sub>/kg<sub>Fe</sub>であるため、ゴミ焼却炉から得られる鉄の量で炉内から排出されるCO<sub>2</sub>の多くを固定化するのは不可能である。しかしCOを生成するゴミ焼却炉システムにすることによって、③の触媒反応から、投入されたCOの1/2のモル数の炭素が、ゴミ焼却施設から排出されるFeの量とは無関係に生成され、残りはCO<sub>2</sub>となって排出される。すなわちカーボンナノチューブを含む炭素の生成とともにCO<sub>2</sub>の半分の量を固定化できることになる。</p>					
キーワード FA	二酸化炭素固定	鉄微粒子	カーボンナノチューブ	ゴミ焼却炉	

(以下は記入しないでください。)

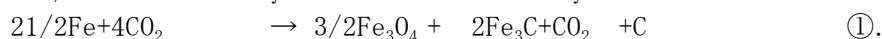
助成財団コード TA					研究課題番号 AA						
研究機関番号 AC					シート番号						

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Fe 微粒子／CO <sub>2</sub> 高温反応に及ぼす CO 濃度の影響							
	著者名 <sup>GA</sup>	桜沢俊明・湯浅三郎	雑誌名 <sup>GC</sup>	第 4 4 回燃焼シンポジウム講演論文集					
	ページ <sup>GF</sup>	438～439	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	0	6	巻号 <sup>GD</sup>	
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>								
	著者名 <sup>GA</sup>		雑誌名 <sup>GC</sup>						
	ページ <sup>GF</sup>	～	発行年 <sup>GE</sup>					巻号 <sup>GD</sup>	
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>								
	著者名 <sup>GA</sup>		雑誌名 <sup>GC</sup>						
	ページ <sup>GF</sup>	～	発行年 <sup>GE</sup>					巻号 <sup>GD</sup>	
図書	著者名 <sup>HA</sup>								
	書名 <sup>HC</sup>								
	出版者 <sup>HB</sup>		発行年 <sup>HD</sup>					総ページ <sup>HE</sup>	
図書	著者名 <sup>HA</sup>								
	書名 <sup>HC</sup>								
	出版者 <sup>HB</sup>		発行年 <sup>HD</sup>					総ページ <sup>HE</sup>	

#### 欧文概要 EZ

In order to clarify the process of the carbon fixation (production) from CO<sub>2</sub> using the high temperature reaction with Fe, the fine Fe particles (average particle diameter of 3.8 μm) was reacted in CO<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> / CO mixtures at the temperature range of 600–900K, and the time variation of their mass and reaction products was investigated. The obtained results are as follows:

○The primary reaction of Fe with CO<sub>2</sub> formed CO and when the CO concentration exceeded 80% in the reaction system, the reaction of Fe with CO proceeded to form Fe<sub>3</sub>C. The catalytic reaction of formed Fe<sub>3</sub>C occurred and decomposed CO into C and CO<sub>2</sub>. It was found that the overall reaction mechanism of the Fe/CO<sub>2</sub> reaction system was described by



This shows that 75% of an initial concentration of CO<sub>2</sub> can be theoretically fixed.

○The solid product of the primary reaction of Fe particles with CO<sub>2</sub> and its overall activation energy were Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> and about 12 kJ/(mole·K), respectively. The catalytic reaction rate of CO by Fe<sub>3</sub>C, producing C, was about 5x10<sup>-3</sup> mg<sub>C</sub>/(mg<sub>Fe</sub>·min). A number of carbon nano-tubes were included in the carbon generated by this catalytic reaction.

○Since the fixing rate of CO<sub>2</sub> for Fe by the reaction ① is only 0.115 Nm<sup>3</sup><sub>CO<sub>2</sub></sub>/kg<sub>Fe</sub>, it is impossible to fix most of CO<sub>2</sub> emitted from a refuse incinerator using the quantity of Fe obtained from the incinerator. However, by changing the incinerator into the furnace system which burns refuse at fuel rich conditions and generates CO, the carbon of the half of the molar number of the emitted CO is formed by the catalytic reaction due to Fe<sub>3</sub>C, independent of the quantity of the Fe discharged from the incinerator.