

未来社会創造事業 探索加速型
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域
終了報告書(探索研究期間)

令和3年度
研究開発終了報告書

平成29年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：阿尻 雅文]

[東北大学 未来科学技術共同研究センター・教授]

[研究開発課題名：低温改質によるC1化学の低エネルギー化]

実施期間：平成29年11月1日～令和4年3月31日

§ 1. 研究実施体制

(1)「阿尻」グループ(東北大学)

① 研究開発代表者:阿尻 雅文 (未来科学技術共同研究センター、教授)

② 研究項目

- ・ 超臨界法による低温作動酸素ナノキャリアの開発とそれを用いたメタノール低温改質の実験的実証

(2)「福島」グループ(東北大学)

① 主たる共同研究者:福島 康裕 (工学研究科、教授)

② 研究項目

- ・ プロセス設計と技術アセスメント

(3)「菊池」グループ(東京大学)

① 主たる共同研究者:菊池 康紀 (未来ビジョン研究センター、准教授)

② 研究項目

- ・ 新規反応技術に誘発されるプロセスシステムオプションの生成
- ・ シミュレーション・評価、及び、研究開発動向分析および戦略立案

(3)「清水」グループ(新潟大学)

① 主たる共同研究者:清水 忠明 (自然科学系・工学部、教授)

② 研究項目

- ・ プロセス設計に向けた酸素キャリア評価

§ 2. 研究実施の概要

現在、世界の水素製造の25%は、メタン改質を介したメタノール合成に占められている。メタン改質は大きな吸熱反応であり、その熱供給をメタンおよび副生CO、H₂の燃焼によって補っており、それが大量のCO₂排出につながっている。

改質反応の低温化を達成する具体的提案コンセプトは、分離反応場・プロセスの利用による低温平衡の打破と低温駆動酸素キャリアの開発にある。探索研究では、1) その達成のための新規触媒・酸素キャリア開発を行い、速度評価に基づき反応工学的的手法により反応プロセス設計を行うとともに、2) 全体プロセスの精密シミュレーションによる多角的成績評価（コスト、エネルギー、副生水素、CO₂固定量等）を行うことでコンセプトの意義を評価するとともに改質プロセスの開発目標の明確化した。

まず、プロセスを正確に再現するシミュレーターを開発し、改質プロセス温度を下げて仮想的にメタン転化率が100%とできたと仮定した場合について成績予測を行った。その結果、改質温度を600℃以下とできれば、メタノール収率を向上させるとともにCO₂排出を大幅に削減できるだけでなく、水素をも併産しうることを見出した。

これを達成するためには、低温で酸素O移動を可能とする酸素キャリアM(O)が必要である。東北大学で発明された超臨界水熱合成プロセスを利用することで、ナノ粒子合成が可能である。CeO₂やFe₃O₄等のナノ粒子を合成し、さらに助触媒金属を担持させ、低温での酸素キャリア能の評価を行った。その結果、通常見られない400-600℃での酸素イオン伝導を発見した。メタン反応、水蒸気反応について評価を行った結果、炭素析出などなく、炭素、水素のマスバランスがとれる条件での反応の進行を確認できた。

以上より、高い可能性が示されたことから、本格研究へ向けて、平成31年度からは、さらにモデル試験機による実現可能性検証を行ってきた。30回以上のサイクルを経ても、メタンと水蒸気から生成するCO、CO₂と水素の比が量論比となっており、サイクリックオペレーションが触媒劣化を生じさせずに可能であることを確認した。

[主要成果] Yoko, A., Fukushima, Y., Shimizu, T., Kikuchi, Y., Shimizu, T., Guzman-Urbina, A., Ouchi, K., Hirai, H., Seong, G., Tomai, T., Adschiri, T., Process Assessments for Low-Temperature Methane Reforming Using Oxygen Carrier Metal Oxide Nanoparticles, *Chemical Engineering & Processing: Process Intensification*, 142, 107531 (2019)