

ALCA-Next

「資源循環」領域

2024 年度 年次報告書

2023 年度採択

[研究開発代表者名: 関根 泰]

[早稲田大学先進理工学研究科 教授]

[研究開発課題名: ケミカルループ法による革新的 CO₂ 転換材料の開発]

主たる共同研究者:

[高崎 智 (ENEOS 株式会社 上級研究員)]

実施期間 : 2024 年 4 月 1 日～2025 年 3 月 31 日

§1. 研究開発成果の概要

早大を中心に、Pr をドーピングした CeO_2 などの材料を開発し、低温化学ループ逆水性ガスシフト (RWGS CL) 処理用の高性能酸素キャリアとして用いた。理論計算と実験、また高度な分析 (SPring-8 での *in-situ* XAFS など) を組み合わせて、試料の優れた酸化還元特性を解明した。Prドーピング CeO_2 の酸化還元性能は、Prドーピング比によって変化した。 $\text{Ce}_{0.67}\text{Pr}_{0.33}\text{O}_2$ は純粋な CeO_2 よりも 5 倍高い CO_2 分解容量を示した。またこれを担体に担持することでさらに高い酸化還元特性を示すことが出来た。*In-situ* XAFS により、Pr ドーピングが 773 K での RWGS-CL サイクル中に $\text{Ce}^{4+} \leftrightarrow \text{Ce}^{3+}$ の酸化還元を促進することが確認された。ニューラルネットワークポテンシャル (NNP) 計算により、Prドーピングが Ce 原子の正電荷シフトを引き起こし、Prドーピング系の高い酸化還元容量に寄与していることが示された。これらを基に、ENEOS にてパラメータ化を行ってプロセスのフィージビリティについて検討し今後の研究開発戦略の策定を進めた。また、RWGS CL のみならず、DR CL (メタンと二酸化炭素の反応のケミカルループング) についても検討を行い、高い性能を示す材料・プロセスを発見し論文化した。これら RWGS CL と DR CL については、計算科学による第一原理熱力学の予言をもとに多様な材料の性能を予言し、これも論文としてまとめ出版した。

【代表的な原著論文情報】

Keke Kang#, Hiroshi Sampei#(#= equal contribution), Yasushi Sekine*,
CO₂ conversion to CO by reverse water gas shift and dry reforming using chemical looping,
RSC Sustainability, 3, 1598-1628, 2025.

[doi: 10.1039/D4SU00395K](https://doi.org/10.1039/D4SU00395K)

ケミカルループの材料の物性を予測するコンピューティングデータを網羅した総説です(本文だけで 30 ページ)。膨大な計算量の結果を網羅した結果が高く評価され、Cover Picture に選定されました。

Keke Kang, Naoki Kayama, Takuma Higo, Clarence Sampson and Yasushi Sekine*,
Low-temperature catalytic chemical looping dry reforming of methane over Ru/La₂Ce₂O₇
Catalysis Science & Technology, 14, 3609-3617, 2024.

[doi: 10.1039/D4CY00450G](https://doi.org/10.1039/D4CY00450G)

低温でのケミカルループングを実現しうる材料を提案し、Cover Picture に選定されました。