

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  
年次報告書(探索研究)

令和2年度 研究開発年次報告書
--------------------

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]

[国立大学法人東北大学・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：令和2年4月1日～令和3年3月31日

## §1. 研究開発実施体制

### (1)「阿尻」グループ(東北大学)

① 研究開発代表者:阿尻 雅文 (東北大学 未来科学技術共同研究センター、教授)

#### ② 研究項目

- ・低温改質プロセス評価
- ・酸素キャリア気相再生プロセスの確立

### (2)「清水」グループ(新潟大学)

① 主たる共同研究者:清水 忠明 (新潟大学自然科学系工学部、教授)

#### ② 研究項目

- ・小型流動層実験装置試作
- ・粒子連続供給・排出の確認、およびガス挙動の評価

### (3)「福島」グループ(東北大学)

① 主たる共同研究者:福島 康裕 (東北大学 大学院工学研究科、准教授)

#### ② 研究項目

- ・低炭素化性能の改善シナリオの検討ツールの開発

### (4)「菊池」グループ(東京大学)

① 主たる共同研究者:菊池 康紀 (東京大学 総括プロジェクト機構、特任准教授)

#### ② 研究項目

- ・詳細プロセスシミュレーション

## §2. 研究開発実施の概要

低温で動作する酸素キャリアを利用したケミカルループ型低温メタン改質プロセスの設計に必要なパラメータの取得のため、メタン部分酸化反応側、水分解反応側双方について速度論解析を行った。加えて、改質プロセスモデル試験装置の設計とプロセス評価小型流動層実験装置の試作を行い、模擬粒子として酸化鉄系粒子を用いた粒子還元と還元粒子と水の反応による水素製造の実験から、水素製造を確認した。本プロジェクトで開発された酸素キャリアを用いて、メタンと水蒸気を用いた改質反応を熱重量分析装置および固定層(移動層の固定層操作)で行い、生成物と量論関係を検証した。

現在の酸素キャリア利用条件では、酸素キャリアの劣化は認められていないが、酸素キャリアが長時間利用により劣化していく場合の対処を想定し、酸素キャリアの再生プロセスについて検討した。その結果、カルボン酸存在下で水熱処理することで、露出活性面が再生し、酸素貯蔵能も劣化前と同程度に戻ることが分かった。また、水の量を極めて少なくし、気相条件にした場合でも粒子形状が変化することが確認され、気相再生の可能性についても示すことができた。

また、技術アセスメントとして、低炭素化効果に関してプロセスフローダイアグラム案を評価し、低炭素化との関係性を解析するとともに、低炭素化に効果的なシステム要件を提案した。さらにプロセスモデルと CO<sub>2</sub> 排出量算定モデルから、ケミカルループのパフォーマンスと連動して、失活や再生頻度などに応じて、酸素キャリアの製造・再生に関わる排出量の許容値を検討するモデルの開発を進めた。

1. Hao, X., Yoko, A., Inoue, K., Xu, Y., Saito, M., Chen, C., Seong, G., Tomai, T., Takami, S., Shluger, A.L., Xu, B., Adschiri, T., Ikuhara, Y. “Atomistic Origin of High-Concentration Ce<sup>3+</sup> in {100}-Faceted Cr-Doped CeO<sub>2</sub> Nanocrystals” *Acta Materialia*, 203, 116473 (2021).
2. Zhu, Y., Seong, G., Noguchi, T., Yoko, A., Tomai, T., Takami, S., Adschiri, T. “Highly Cr-substituted CeO<sub>2</sub> nanoparticles synthesized using a non-equilibrium supercritical hydrothermal process: high oxygen storage capacity material designed for low-temperature bitumen upgrading process” *ACS Applied Energy Materials*, 3 (5), 4305–4319 (2020).
3. Lu, J., Asahina, S., Takami, S., Yoko, A., Seong, G., Tomai, T., Adschiri, T. “Interconnected 3D framework of CeO<sub>2</sub> with high oxygen storage capacity: High-resolution scanning electron microscopic observation” *ACS Applied Nano Materials*, 3, 2346–2353 (2020).