

カーボンリサイクル技術研究所 活動実績報告書

令和5年4月1日～令和6年3月31日

令和6年5月31日

所長 福原長寿

1. 研究概要

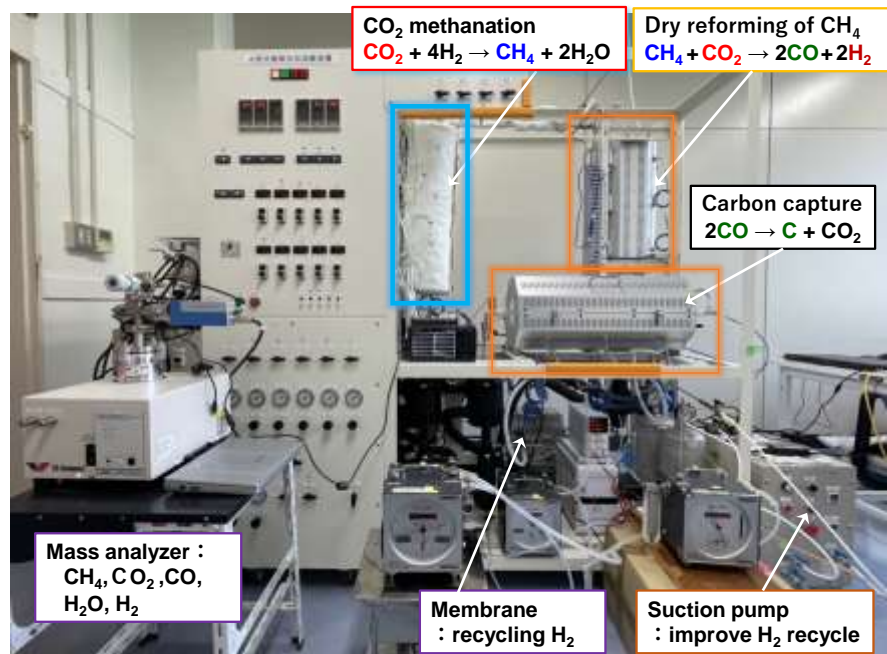
本研究所では、COP(国連気候変動枠組条約締約国)会議で我国が世界に向けて発信したCO₂ガス削減の約束草案(INDC, Intended Nationally Determined Contributions)の実現に貢献する、革新的な触媒技術&触媒プロセスの開発を目指す。具体的には、産業プロセスから排出される温室効果CO₂ガスを削減し、かつその資源利用を図る革新的な触媒変換システムに関する工学技術の開拓、そしてその社会実装に係わる技術の開発である。

取り組む研究活動においては、以下の5つの項目を中心としている。

- 〔1〕メタネーション反応を利用したCO₂のCH₄への資源化システムの開発
- 〔2〕CH₄のドライ改質による合成ガス(H₂+CO, C1化学産業の原料)製造システムの開発
- 〔3〕合成ガスからの有用化学物質の製造に関する工学技術の開発
- 〔4〕GHGから固体炭素を捕集し、今までにない利便性の高いCCS技術の開発
- 〔5〕捕集カーボンの機能性材料としての活用技術の開発

2. 活動実績

前年度と一昨年度の成果をベースに、右写真に示す実験室規模としては大型のCO₂のリサイクル資源化装置(R5年度早期に完成)を活用し、CO₂処理技術の継続したデータ採取を実施した。本装置は、産業プロセスからの排出ガスCO₂の処理を想定し、前段：メタネーション部＋中段：CH₄のドライ改質部＋後段：固体炭素の捕集部



産業排出CO₂の資源化と固定化を図るラボレベルの大型触媒反応装置

の連結型反応システムで構成している。本装置の最大のガス処理量は20L/minである。この装置をベースとした実運転データの集積活動を開始し、以下の有用な知見データを採取した。

① メタネーションによるCO₂のCH₄化技術

多くの研究機関が 10~200ml/min 程度の CO₂ 処理量で実施していたメタネーション反応であるが、当研究所では構造体触媒システムを採用することで 1,000~20,000ml/min の処理と安定した発熱エネルギーの制御を実施することに成功した。また、産業プロセスからの実際の排ガス処理が可能であることも実証できた。社会実装が可能であることを示す大きな技術進展が得られた。

② CH₄のドライ改質反応技術

ドライ改質反応 ($\text{CH}_4 + \text{CO}_2 \rightarrow 2\text{H}_2 + 2\text{CO}$) は、現在多くの企業がこの反応を 800°C 以上の熱エネルギーを加えて実施している。しかし、構造体触媒システムを採用することで 700°C 以下でも効率的に運転する技術を確立することに成功した。加えて、原料ガスの処理量は最大 3,000ml/min を実現した。これは、ドライ改質に関する発表論文では世界でまだだれも報告していない、実施困難なレベルである。また、ドライ改質は熱力学的に難易度の高い化学反応とされてきたが、構造体触媒システムがもつ物質移動の加速効果を組み込むことで、従来プロセスを凌駕する物質変換力が得られた。

③ 固体炭素の捕集技術 (カーボンリサイクルのポイント技術)

当研究所が発足した時点での固体炭素の捕集率はおよそ 10% 程度であり、実用化のレベルにはまだ達していなかった。しかし、この 3 年間の研究所活動において捕集触媒材料の開発と炭素捕集システムの化学工学的な検討、炭素捕集要因の学術的な検討などを加えた結果、現時点では捕集率 56% を達成することができた。すべての産業プロセスから排出される CO₂ ガスの処理に適用できるわけではないが、COP26 会議の約束草案 2030 年度目標 (2013 年度比で 46% 削減) に貢献できるカーボンリサイクル技術である。

3. 論文発表

今年度の研究所活動に関する学術論文誌への発表状況は以下の通りである。

- 1) Steam reforming of aromatics mixture as a model tar over Ni/Al₂O₃ structured catalyst, Ryo Watanabe, Takuya Tanabe, Yuya Fushimi, Priyanka Verma, Choji Fukuhara, *New Journal of Chemistry*, 48, 8213-8221, 2024.
- 2) 水素の利用技術：メタネーション, 福原, えねるみくすー日本エネルギー学会機関誌, 103/3, 363-369, 2024.
- 3) Scalable one-step synthesis of reduced graphene oxide: Towards flexible transparent conductive films and active supercapacitor electrodes, Fangbo Yao, Wenruo Li, Choji Fukuhara, Chang Yi Kong et al., *Chemical Engineering Journal*, 150828, 2024.
- 4) Effect of H₂S co-feeding on the performance of Fe/SiO₂ catalyst for isomerization and dehydrogenation of C5-monoolefin, Karasawa Fumiya, Watanabe Ryo, Verma Priyanka, Miyagi Yuichi, Yamada Hikaru, Miyanari Setsuko, Fukuhara Choji, *New Journal of Chemistry*, 48, 3357-3363, 2024.
- 5) Influence of sulfur contamination on ethylene aromatization over a Ga-modified MFI-type zeolite, Kazumasa Oshima, Ryo Watanabe, Eriko Konishi, Choji Fukuhara, Masahiro Kishida, *Chemical Engineering Journal*, 480, 148241, 2024.

- 6) Plasmonic heterojunction photocatalysts for hydrogen generation: A mini-review, Priyanka Verma, Yasutaka Kuwahara, Kohsuke Mori, Ryo Watanabe, Choji Fukuhara, Hiromi Yamashita, *energy & fuels*, 37/23, 17652-17666, 2023.
- 7) One-step synthesis of fragment-reduced graphene oxide as an electrode material for supercapacitors, Fango Yao, Jiaojiao Ma, Choji Fukuhara, Chang Yi Kong et al., *ACS Applied Materials & Interfaces*, 15-36, 42424-42438, 2023.
- 8) Effect of Ga substitution with Al in ZSM-5 zeolite in methanethiol-to-hydrocarbon conversion, Ryo Watanabe, Natsu Oba, Suchada Smith, Kazumasa Oshima, Masahiro Kishida, Koji Miyake, Norikazu Nishiyama, Priyanka Verma, Choji Fukuhara, *RSC Advances*, 13, 21441-21447, 2023.
- 9) Electric-field-assisted catalytic methanethiol decomposition using Pt/CeO₂ catalyst, Kazumasa Oshima, Ryo Watanabe, Choji Fukuhara, Masahiro Kishida, *Catalysis Letters*, 154, 1398-1403, 2023.
- 10) Ethylene production via thermal coupling of methanethiol, Ryo Watanabe, Natsu Oba, Itsuki Kakuno, Suchada Smith, Kazumasa Oshima, Masahiro Kishida, Priyanka Verma, Choji Fukuhara, *Chemistry Letters*, 52, 661-664, 2023.
- 11) Synthesis of 2,5-dimethylhexene by isobutene dimerization with H₂S co-feeding, Ryo Watanabe, Riku Tanikawa, Arisa Kurosaki, Kazumasa Oshima, Masahiro Kishida, Priyanka Verma, Choji Fukuhara, *RSC Advances*, 13, 14097-14101, 2023.

4. 研究所の学外講演活動に関する実績は以下の通りである。

- 1) 情報機構セミナー講演会、メタネーションの基礎・国内外動向から合成ガスの製造と固体炭素の連続回収技術の実際まで、福原、2023.6.27.
- 2) CMC リサーチセミナー講演会、CO₂の資源化と固体炭素化の新しい触媒プロセス技術、福原、2023.6.30.
- 3) 磐田商工会議所主催：企業懇談会、温室効果 CO₂ ガスの削減と利用(CCUS)を図る革新的な触媒反応技術、福原、2023.10.2.
- 4) 静岡大学・中日新聞連携講座 2023、CO₂の削減&利用で COP 会議の約束草案に貢献する革新的な触媒反応技術、福原、2023.10.24.
- 5) サイエンス&テクノロジーセミナー、カーボンニュートラルに向けたメタネーションの要素技術と産業実装への展望、福原、2023.11.10.
- 6) (公)浜松科学技術研究振興会 科学技術交流会 2024 静岡、温室効果 CO₂ ガスの削減&利用で COP 会議の約束草案に貢献する革新的な物質変換技術、福原、2024.2.2.

5. 活動資金

<福原長寿（所長）>

科学研究費補助金-基盤研究（A）

科学研究費補助金-挑戦的研究（開拓）

<河野芳海（研究員）>

科学研究費補助金-基盤研究（B）

<渡部 綾（研究員）>

科学研究費補助金-基盤研究（B）

科学研究費補助金-挑戦的研究（萌芽）

<武田和宏（研究員）>

科学研究費補助金-新学術領域（研究領域提案型）

5. その他

<研究所活動の表彰>

1) 浜松いわた信用金庫 産学連携大賞 産学連携の推進による地域活性化への貢献、福原、2024.3.