

新規触媒反応場による地域炭素資源循環

研究代表者 関根 泰
(先進理工学部 応用化学科 教授)

1. 研究課題

地域分散型バイオ系資源の発酵によって得られるバイオガスは、メタンと二酸化炭素が主成分であり、これをドライリフォーミングと呼ばれる反応によって転換すれば高付加価値化ができる。この反応は大きな吸熱反応であり、十分な平衡転化率達成のために 1000 K 以上といった高温が必要である。さらに副反応によって析出する炭素が反応を阻害することが知られている。そこで電場印加触媒反応を適用してドライリフォーミングによる水素・合成ガスへの転換を低温（100 度台）にて検討した。

2. 主な研究成果

Ni/La-ZrO₂ 触媒は、電場中では 473 K でも様々な触媒の中で最高の性能を示すことがわかった。電場を印加した場合の見かけの活性化エネルギーの計算値 (CH₄, 8.2 kJ mol⁻¹; CO₂, 12.1 kJ mol⁻¹) は、電場を印加しない場合の値 (CH₄, 66.1 kJ mol⁻¹; CO₂, 62.3 kJ mol⁻¹) に比べてはるかに低く、DRM は従来の触媒反応とは異なるメカニズムで進行することが示唆された。La-ZrO₂ への Ni 担持量を変化させた場合の還元挙動を調べた結果、NiO は 600-750 K で還元され、La-ZrO₂ の一部は 900-1000 K で還元されこれらの触媒間で還元温度に差は見られなかった。触媒表面の吸着水を介したプロトン伝導は、423 K のような低い温度範囲でより容易に進行する。その結果、DRM 反応における伝導率は、423 K などの低温領域で増加した。Ni 担持 La-ZrO₂ 触媒では、電場による DRM 反応においても、表面の水素含有吸着種や水酸基を介してプロトン伝導が起こることが示唆された。電場中における DRM の反応サイトを解明するために、Ni 担持触媒 (NLZ) の担持量を変化させてターンオーバー頻度を評価した。電場中での DRM 活性は、Ni 比表面積よりもむしろ Ni 周囲長に強い依存性を示し、これは電場中での CH₄ および CO₂ 解離の活性化が主に Ni と La-ZrO₂ 界面で進行することを示している。Ni/La-ZrO₂ 触媒の電場印加による DRM では、表面伝導に由来するプロトン衝突による表面プロトニクスが起こり、CH₄ と CO₂ の解離が活性化されることがわかった。さらに、CH₄ と CO₂ からの CO 生成速度に対する P_{CH_4} と P_{CO_2} の反応次数を合わせて考えると、電場印加 DRM における律速段階は CO₂ の解離である。

3. 共同研究者

北川 宏 (京都大)
中井 浩巳 (早稲田大)
田中 宗 (慶應義塾)
比護 拓馬 (早稲田大)

4. 研究業績

4.1 学術論文

Chien-Pin Chou, Aditya Wibawa Sakti, Yuta Tsuchiya, Yasushi Sekine, Hiromi Nakai*,
Density-Functional Tight-Binding Molecular Dynamics Study on Fixation Reaction of CO₂
to Styrene Oxide Catalyzed by Mg-MOF-74 Metal-Organic Framework,
Chemistry Letters, 53(1), upae004, 2024.

doi: 10.1093/chemle/upae004

Ayaka Shigemoto*, Yuki Inoda, Chihiro Ukai, Takuma Higo, Kohei
Oka, Yasushi Sekine*,

Electric field-assisted NSR process for lean NO_x reduction at low
temperatures,

Chemical Communications, 60, 1563-1566, 2024.

doi: 10.1039/D3CC05189G

Cover Picture に選定

Keke Kang, Sota Kakihara, Takuma Higo, Hiroshi Sampei, Koki
Saegusa, Yasushi Sekine*,

Equilibrium unconstrained low-temperature CO₂ conversion on
doped gallium oxides by chemical looping,

Chemical Communications, 59, 11061-11064, 2023.

doi: 10.1039/D3CC02399K

Cover Picture に選定

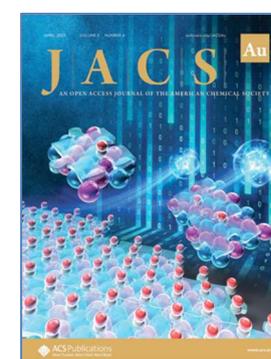
Hiroshi Sampei, # Koki Saegusa, # Kenshin Chishima, Takuma Higo,
Shu Tanaka, Yoshihiro Yayama, Makoto Nakamura, Koichi Kimura,
and Yasushi Sekine*

Quantum Annealing Boosts Prediction of Multimolecular Adsorption
on Solid Surfaces Avoiding Combinatorial Explosion,

JACS Au, 3, 4, 991-996, 2023.

doi: 10.1021/jacsau.3c00018

Cover Picture に選定・早稲田大学プレスリリース・4/5 日本経済新聞・
4/7 化学工業日報・4/10 日刊工業新聞などで紹介



4.2 総説・著書

関根 泰 (監修),

メタネーションとグリーン水素の最新動向, CMC 出版, 2023.

(巻頭言、2章4節も執筆)

関根 泰 (監修),

有機ハイドライド・アンモニアの合成と利用プロセス, CMC 出版, 2023.

(巻頭言、節も執筆)

比護拓馬, 関根 泰,

高速酸化物イオン拡散を活かした低温でのケミカル・ルーピング型逆水性ガスシフト,
触媒, 65(4), 246-251, 2023.

土井咲英, 本村彩香, 関根 泰,

水素製造・貯蔵の現状と未来—グリーン水素をどのように作り、貯蔵輸送して利用するか、
化学と工業, 320-322, 5, 2023.

山野 遼太, 関根 泰,

100 度台で二酸化炭素を一酸化炭素に転換する触媒プロセス,
クリーンエネルギー, 32(8), 16-22, 2023.

4.3 招待講演

[依頼講演]2024/2/7 名古屋 東邦ガス講演会

カーボンニュートラルを見据えた水素・e-メタン等の現状とこれから 関根 泰

[依頼講演]2024/2/5 大阪 クボタ講演会

カーボンニュートラルについて 関根 泰

[特別講演]2024/1/28 高知県 IoP プロジェクト国際シンポジウム

物質閉鎖系である地球におけるカーボンニュートラルと我が国の戦略 関根 泰

[依頼講演]2024/1/23 開催 企業内講演会

バイオ炭の利用を考える 関根 泰

[依頼講演]2024/1/16 新潟 アストモス講演会

カーボンニュートラルに向けたエネルギートランジション・GX と LPG の今後 関根 泰

[依頼講演]2023/12/22 大阪 大阪科学技術センター 産業界におけるカーボンニュートラル研
究会 第 15 回定例研究会

カーボンリサイクルの全体像と技術課題 関根 泰

[依頼講演]2023/12/12 開催 講演会

カーボンニュートラル実現・GX 推進のためのエネルギーの今後を考える 関根 泰

[依頼講演]2023/12/8 第 16 回スーパーコンピューティング技術産業応用シンポジウム

カーボンニュートラル社会に向けた化学に貢献する HPC × 量子技術 関根 泰

[依頼講演]2023/12/5 開催 講演会

カーボンニュートラル実現・GX 推進のためのエネルギー・化学の今後を考える 関根 泰

[パネル講演]2023/11/28 東京 講演会 パネル講演

関根 泰

[依頼講演]2023/11/10 開催 講演会

カーボンニュートラルに向けたエネルギートランジション・GX と LPG の今後 関根 泰

[依頼講演]2023/11/7 開催 講演会

カーボンニュートラルと GX におけるエネルギー・建築・材料の今後 関根 泰

[依頼講演]2023/10/27 三島 第 14 回新電極触媒シンポジウム・セミナー

海外と日本の水素社会に向けた取り組み 関根 泰

[依頼講演]2023/10/26 東京 TGU International Symposium: Energy and Nanomaterials
for a Carbon Neutral Society in a Sustainable Future

Trends and Policies on Carbon Neutral Research in Japan Yasushi SEKINE

[依頼講演]2023/10/19 京都 HORIBA 講演会

温室効果ガスの影響評価と対策のための分析・排出削減手法と今後の政策動向 関根 泰

[依頼講演]2023/9/26 開催 講演会

2050 年カーボンニュートラルに向けた水素関連・CO₂資源化関連技術の現状と今後 関根 泰

[依頼講演]2023/9/23 東京 日本技術士会講演会

物質閉鎖系である地球におけるカーボンニュートラルと化学産業の道筋 関根 泰

[依頼講演]2023/9/22 開催 企業内講演会

CN/GX に関連した最新の動向 関根 泰

[依頼講演]2023/9/10 仙台 令和 5 年度化学系学協会東北大会および日本化学会東北支部 80 周年記念国際会議

Surface protonics promotes low temperature catalysis Yasushi SEKINE

[依頼講演]2023/9/7-8 神戸 第 20 回 SPring-8 産業利用報告会

二酸化炭素転換のための触媒・材料の放射光を用いた微細構造解析 関根 泰

[依頼講演]2023/8/8-9 福岡 第 32 回日本エネルギー学会大会

カーボンニュートラル・GX とグリーン燃料、グリーン LPG の現状と未来 関根 泰

[依頼講演]2023/8/1 大阪 企業講演会

カーボンニュートラルとは 関根 泰

[ワークショップ]2023/7/28-29 に台湾新竹の国立陽明交通大で 2023 Taiwan-Japan Symposium on Reaction Control (TJSReC)を主催

[依頼講演]2023/7/14 東京 国立環境研究所-自動車工業会共同コンファレンス

物質閉鎖系である地球上での物資・資源の変換・循環利用とその技術課題 関根 泰

[依頼講演]2023/7/13 東京 循環バリューチェーンコンソーシアム 第 10 回セミナー

グリーンイノベーションプロジェクトにおける廃棄物・資源循環の方向性 関根 泰

[依頼講演]2023/7/5 東京 日本ゴム協会講演会

カーボンニュートラルを実現するための化学・高分子の向かうべき方向性 関根 泰

[依頼講演]2023/6/22 大阪公立大 人工光合成研究センター開所 10 周年記念講演会

2050 カーボンニュートラル実現に向けたこれからのエネルギーと物質 関根 泰

[依頼講演]2023/6/12-13 高知 産学連携学会 第 21 回大会シンポジウム講演

2050 年カーボンニュートラルと高知県におけるグリーン LPG 関根 泰

[依頼講演]2023/6/1 開催 JACI 講演会

物質閉鎖系である地球における CN/GX とエネルギー・化学分野の今後 関根 泰

[依頼講演]2023/5/25 開催 企業内講演会

カーボンニュートラルに向けたエネルギートランジション・GX と LPG の今後 関根 泰

[依頼講演]2023/5/19 開催 企業講演会

プラネタリーバウンダリーズとカーボンニュートラル 関根 泰

[依頼講演]2023/5/15 東京会議

ネガティブエミッションと農業の連携に関して 関根 泰

[依頼講演]2023/5/9 東京 講演会

カーボンニュートラルに向けたエネルギートランジションと GX 関根 泰

[依頼講演]2023/4/19 台湾新竹講演会

Surface protonics promotes heterogeneous catalysis Yasushi SEKINE

[依頼講演]2023/4/11 つくば産総研 講演会

非在来型プロセスによる低温作動触媒とその応用 関根 泰

[依頼講演]2023/4/11 都内 講演会

クリーンエネルギー戦略中間整理を踏まえた GX の実行推進と今後の方向性 関根 泰

4.4 受賞・表彰

2023/5/15-17 ソウル開催 The 19th Korea-Japan Symposium on Catalysis
Ammonia Decomposition at Low Temperature using Ru/CeO₂ Catalyst in an Electric Field
Yukino Ofuchi, Sae Doi, Kenta Mitarai, Ken Kawabe, Yasushi Sekine*
Young Poster Presentation Award を受賞
Theoretical Investigation of Material Properties on CO₂ Capture by Applying Electric Field
Kenshin Chishima, Koki Saegusa, Hiroshi Sampei, Kazuharu Ito, Kota Murakami, Jeong
Gil Seo, Yasushi Sekine* Young Poster Presentation Award を受賞
2023/10/30-11/2 に中国で開催された 9th Asia Pacific Congress on Catalysis (APCAT-9)にて
Excellent poster award を受賞
Ethane dehydrogenation under steam co-feeding atmosphere over YCrO₃ perovskite
Kosuke Watanabe, Takuma Higo, Shun Maeda, Hideaki Tsuneki, Kunihide Hashimoto, and
Yasushi Sekine

4.5 学会および社会的活動

Elsevier: Fuel 誌基幹 Editor (2017/2-)
JST さきがけ「反応制御」領域総括 (2018/4-)
経済産業省産業構造審議会グリーンイノベーションプロジェクト部会委員・第 1WG 委員・第
2WG 委員・第 3WG 委員
日本国グリーンイノベーション戦略推進会議 (経済産業省・内閣府・文部科学省・農林水産省・
環境省など合同) 委員・WG 座長(2020/7-)
文部科学省第 11 期環境エネルギー委員会委員・委員長代理(2021/7-)
政府 GX 専門家会議委員(2023/11-)
Natural Gas Conversion Board Member (国際天然ガス転換会議ボードメンバー2016/6-)
NEDO 未踏チャレンジ 2050 プログラムオフィサー(2018/06-)
Springer-Nature: Catalysis Surveys from Asia 誌 Editorial Board
水素エネルギー協会理事 (2018/5-)
触媒学会天然ガス転換触媒研究会代表 (2015/3-)
日本化学連合理事(2012/6-)
日本化学連合運営委員会副委員長 (2015/5-)・政策提言 WG 委員
高知県脱炭素社会推進協議会委員 (2021/8/25-2024/3/31)
JST-CREST 「革新的反応」領域アドバイザー (2018/4-)
経済産業省トランジションファイナンス委員(2021/7-)
Fuel Processing Technology (Elsevier) Editorial Board Member
JACI (公社:新化学技術推進協会) フロンティア連携委員 (2016/7-)
触媒学会国際交流委員会委員 (2017/5-)
触媒学会水素の製造と利用のための触媒技術研究会世話人(代表:2010/3-2012/3)
触媒学会工業触媒研究会世話人(2010/3-)
石油学会運営委員会委員 (2018/5-)
石油学会部会連絡会代表(2018/5-)
文部科学省科学研究費補助金学術変革領域研究表面水素工学領域アドバイザー(2021/9-)
他多数

5. 研究活動の課題と展望

バイオマスの転換利用を進めていくために、炭素析出抑制を目的とした金属間化合物触媒と、反応低温化を目的とした電場触媒反応を組み合わせることで得られる新規触媒プロセスをさらに検討し、低温域での活性の向上、炭素析出の抑制、加圧での反応活性向上、を進めていきたい。