

Adsorption News

Vol. 34, No. 2 (July 2020)

通巻 No.133

目 次

○巻頭言.....	2
「CO ₂ 特集に寄せて」	余語 克則
○奨励賞受賞記念寄稿.....	3
「火力発電所排ガス、および大気中からの二酸化炭素吸着分離 ：プロセスモデリングと最適化」	川尻 喜章
○特集「CCUS (Carbon dioxide Capture, Utilization and Storage) の最前線」 「二酸化炭素分離回収・有効利用・貯留技術開発 (CCUS) の最新動向」.....	8
	清水 淳一、山田 秀尚
「CO ₂ 貯留技術と苫小牧 CCS 実証試験」	13
	萩原 利幸
「メタネーション大規模実証に向けた基盤研究および CO ₂ 分離回収と利用の統合プロセスに関する研究開発」	18
	則永 行庸、張 煒、チェ チョルヨン 柳瀬 慶一、チャン クウイン、町田 洋
「有人宇宙ミッションに向けた閉鎖空間における 環境制御・生命維持システム技術開発」	23
	坂井 洋子、中野屋 壮吾
「Flexible MOF を活用した CO ₂ 吸着分離プロセスの可能性」	30
	平出 翔太郎、田中 秀樹
○会告.....	36
【開催中止】 第 34 回日本吸着学会研究発表会 【開催中止】 第 30 回吸着シンポジウム (吸着夏の学校)	
○関連学会のお知らせ.....	37
○維持会員一覧.....	39

日本吸着学会
The Japan Society on Adsorption

巻 頭 言

CO₂ 特集に寄せて

公益財団法人地球環境産業技術研究機構 余語 克則



2018年に大気中のCO₂平均濃度は408ppmにまで達した。最近では410ppmを超える観測値も報告されている。私が所属する公益財団法人地球環境産業技術研究機構（RITE）では近隣の奈良先端科学技術大学院大学で連携研究室を担当しており、大学で講義を担当し始めたころは360～370ppm程度と教えていたが、毎年数字を更新しており、ついにここまで来たかという感がある。

CO₂の累積排出量と世界平均地上気温の応答はほぼ比例関係にあり、IPCC（Intergovernmental Panel on Climate Change）のいわゆる2℃シナリオ（2100年にCO₂濃度を430～480ppmに安定化するシナリオ）では、電力部門において2050年に年間排出量をほぼゼロにする必要があるとされている。また、国際エネルギー機関による世界のCO₂削減量見通し（IEA, Energy Technology Perspectives 2017）では、パリ協定の長期目標を実現するために2060年に必要とされる削減量は約300億トンとされている。

CO₂の排出削減は急務であり、我が国においては、昨年6月に経済産業省によりカーボンリサイクル技術ロードマップが策定されている。また今年1月に策定された「革新的環境イノベーション戦略」においては、過去に排出されて大気中に蓄積しているCO₂の削減、すなわち「ビヨンド・ゼロ」を可能とする革新的技術を2050年までに確立することを目指している。本戦略における「イノベーション・アクションプラン」では5つの重点領域が設置されており、その一つとして「カーボンリサイクル、CCUS（Carbon Capture, Utilization & Storage）」が位置づけられている。大規模発生源から回収したCO₂の地中貯留に加えて、燃料や原料としての利用、さらには大気中から直接CO₂を回収する「DAC（Direct Air Capture）」の検討も始まっている。DACについては海外で検討が進んでいるが、今後の普及のためには回収エネルギー・コストともに大幅に低減する必要がある。海外で検討されているDAC技術のほとんどが化学吸着を利用した方式であり、吸着技術への期待が高い。

RITEでは、これまでに化学吸収法で製鉄所の排ガスを対象にして、回収エネルギーの小さい新規なアミン（水溶液）の開発・実用化に成功し、最近ではDAC

も視野に入れて、さらに高効率回収・低エネルギー消費を可能とする吸着技術の開発を行っている。

一方、回収したCO₂の貯留や有効利用に関しては、世界的に大規模なCO₂貯留事業が20件近く稼働中であり、国内でも実証試験が進められている。2016年末から日本CCS調査隊が苫小牧においてCO₂圧入を開始し、これまでに30万トンを圧入した。現状、地中貯留とEOR（Enhanced Oil Recovery：石油増進回収）以外に大規模にCO₂を使用する用途がなく、産業利用としては使用量が限られている。温暖化対策として寄与するためには数億トンレベルのCO₂利用技術が必要である。メタネーションをはじめとする水素キャリアとしての燃料利用が検討されている。また、有人宇宙活動においては、宇宙ステーションなどの閉鎖空間においてCO₂を回収しメタネーションによる資源循環が検討されており、ここでも吸着技術が使用されている。

今回CO₂特集を組むにあたり、編集委員会での相談の結果、本特集では回収から貯留・利用までのCO₂削減技術を俯瞰するという意味で、CO₂分離回収技術開発の動向、回収したCO₂の貯留技術、有効利用技術としてのメタネーション、閉鎖（宇宙）空間における資源循環を指向したCO₂回収、最新のCO₂吸着分離技術まで、本分野をリードする方々に執筆いただいた。広くCCUSについて知っていただくとともに、吸着学会の皆様の今後の研究会開発の参考としていただければありがたい。

氏名 余語 克則

所属 公益財団法人地球環境産業技術研究機構 化学研究グループ 副主席研究員

略歴 1993年3月 早稲田大学大学院 理工学研究科 応用化学専攻博士後期課程修了 博士（工学）
早稲田大学理工部助手、客員講師、株式会社三菱総合研究所先端科学研究所主任研究員を経て
2002年7月 公益財団法人地球環境産業技術研究機構入所

現在、同副主席研究員、奈良先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科 客員教授（環境適応物質学研究室）

奨励賞受賞記念寄稿

火力発電所排ガス、および大気中からの二酸化炭素吸着分離：プロセスモデリングと最適化

Adsorptive separation of CO₂ from coal-fired power plant and air: process modeling and optimization

名古屋大学大学院工学研究科
Graduate School of Engineering, Nagoya University

川尻 喜章
Yoshiaki Kawajiri

1. 緒言

大気中の二酸化炭素濃度上昇による地球温暖化が脅威となっている。大気中の二酸化炭素濃度は観測史上初となる 400 ppm を超えた。この問題に対処すべく、様々な二酸化炭素回収技術が開発、検討されている。二酸化炭素を回収し貯留する Carbon Capture and Sequestration (CCS) に加え、回収した二酸化炭素を再利用する Carbon Capture and Utilization (CCU) の概念も注目を浴びている。国内では、政府の主導により 2050 年までの技術ロードマップが示された¹⁾。

二酸化炭素回収のための有力な技術として、吸収、膜と並んで吸着分離が挙げられる。液相吸収による回収に比べ、固体吸着剤による回収は、再生に必要なエネルギーが低く抑えられる可能性が指摘されている。しかし、大規模かつ低コスト、低エネルギー消費で回

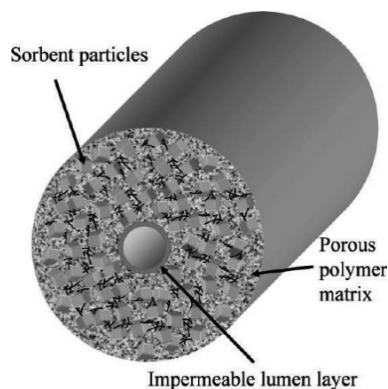


図1 中空糸型吸着剤（ACS Publications の許可を得て文献より転載²⁾）

収を行うには大幅な技術的進歩が求められている。

二酸化炭素回収の方法は、排出源からの回収と大気中からの直接回収の2種類が提案されている。それぞれの特徴を表1にまとめた。どちらの回収方法においても吸着は有望な分離技術と認識されており、世界中の研究者が二酸化炭素吸着回収プロセスの開発に取り組んでいる。本稿では、それぞれの技術について著者自身が取り組んだ事例を紹介する。

2. 火力発電所排ガスからの回収

米国エネルギー情報局による 2019 年の調査³⁾では、米国における二酸化炭素排出量の 32% が発電所からのものと推算されており、この排出源からの効率的な回収技術の開発が急務となっている。火力発電所からの二酸化炭素回収には燃焼前回収（pre-combustion）、燃焼後回収（post-combustion）、及び酸素濃度を高めて燃焼させる酸素燃焼（oxy-fuel）があり、本研究では燃焼後回収について取り組んだ。

機械的（電気）エネルギーが必要な圧力スイング吸

表1 二酸化炭素回収方法

	利点	欠点
排出源（燃焼排ガス等）からの回収	二酸化炭素濃度が高いため効率的に分離可能	- 設置場所は排出源付近に限られる - 運輸からの排出ガスや、過去に排出されて既に大気中に蓄積されている二酸化炭素には対応できない - SO_x、NO_x による吸着剤劣化
大気中からの回収 Direct Air Capture (DAC)	- 設置場所を自由に選べる（エネルギー源や再利用場所の近く） - 運輸からの排ガスや、過去に排出され大気中に蓄積された二酸化炭素の回収が可能 - 回収を行う大気中は、SO_x、NO_x 濃度が低い	- 低濃度（約 400 ppm）からの二酸化炭素回収が必要 - 大量の空気を循環させ吸着剤に接触させることが必要

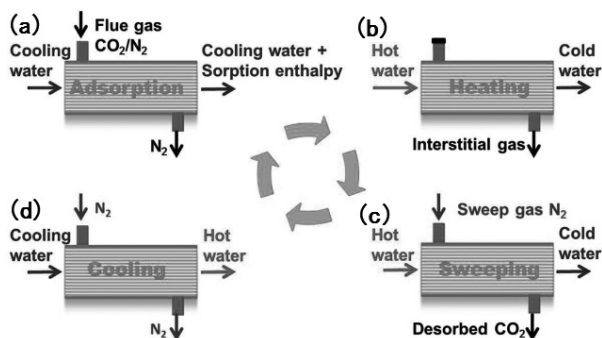


図3 RTSA プロセスのサイクル (John Wiley and Sons の許可を得て文献より転載⁷⁾)

着に対し、温度スイング吸着プロセスはより安価な熱エネルギーを利用できる。しかし、従来型の充填層は伝熱が遅いため、昇温と降温にかかる時間が長く、単位時間あたりの処理量が小さい。これを解決するため、ジョージア工科大学の Ryan Lively および William Koros 教授のグループによって開発された中空糸型吸着剤を図1に示す^{2,4}。これはポリマー（セルロースアセテート、Torlon[®]等）製の中空糸型支持層（porous polymer matrix）の中に固体粒子の吸着剤（sorbent particles）が埋め込まれている。内部の空洞に冷水を通すことにより吸着操作時には吸着熱を除去し、脱着操作時には温水を通すことにより脱着熱を供給することができる。この中空糸型の形状により伝熱の効率が上がり、高速温度スイング（Rapid Temperature Swing Adsorption, RTSA）を可能にしている。この空洞とポリマー層はネオプレン製の非浸透内腔層（impermeable lumen layer）で分離されており、気相から温水や冷却水への浸透は遮断され、伝熱のみが起こる。

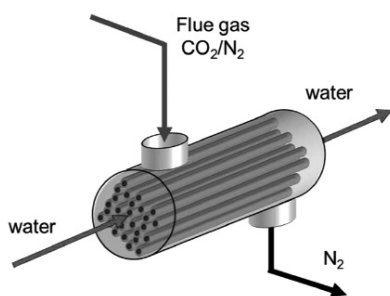


図2 中空糸型吸着剤を使った RTSA プロセス (Elsevier の許可を得て文献より転載⁵⁾)

更には、中空糸型吸着剤はモノリス型吸着剤と同じく規則的構造を持っていることから、充填層に比べて圧力損失が低いことも利点である。この中空糸型吸着剤は、中空糸膜と同じように紡糸法による製造が可能

である。また、図2に示すようにモジュールに充填してスケールアップが可能である。この研究の詳細は Adsorption News⁶ でも過去に報告している。

この中空糸型吸着剤を使った吸着モジュール、およびそれを使った温度スイング操作を図3に示す。この吸着モジュールは多管円筒式熱交換器、あるいは中空糸膜モジュールと似た構造になっている。高速温度スイング操作のサイクルは、吸着、加熱、脱着（スイープ）、冷却（それぞれ図3(a)、(b)、(c)、(d)）の4工程から成る。これらの工程のうち、吸着および冷却の2工程においては、内部の空洞内に冷水を通すことにより冷却と吸着熱の除去を行う。そして脱着および加熱の工程では、内部の空洞内に温水を通すことにより加熱と脱着熱の供給を行う。

吸着等温線取得、および破過応答試験を行うことで数式モデルを構築し^{8,9}、このモデルを使って RTSA プロセスの設計を行った。この設計では、以下の最適化問題を数値計算手法により解くことで、最適設計及び操作パラメータを決定した¹⁰。

$$\text{Maximize throughput} \quad (1)$$

$$\text{subject to: Purity}_{\text{CO}_2} \geq \text{Purity}_{\text{min}} \quad (2)$$

$$\text{Recovery}_{\text{CO}_2} \geq \text{Recovery}_{\text{min}} \quad (3)$$

ここで、throughput は二酸化炭素の単位時間当たり処理量、 $\text{Purity}_{\text{CO}_2}$ 及び $\text{Recovery}_{\text{CO}_2}$ は製品の二酸化炭素純度及び回収率、 $\text{Purity}_{\text{min}}$ 及び $\text{Recovery}_{\text{min}}$ は要求される二酸化炭素純度及び回収率である。上記(1)–(3)で表される最適化問題を解くことにより、最適な操作変数（吸着時間、加熱時間、脱着時間、冷却時間、二酸化炭素製品と放出ガス切り替え時間、冷却水及び温水流速）が求められる。吸着は40℃、脱着は120℃で行われると仮定した。

上記の手法により最適化された RTSA プロセスについて経済性評価も行ったところ、二酸化炭素回収コストは \$39.4/t-CO₂ と計算された。この評価は米国エネルギー省の国立エネルギー技術研究所（National Energy Technology Laboratory）が発行したガイドラインに準拠している^{11–15}。このガイドラインでは、電気エネルギー正味出力が550 MW-electricity の火力発電所を基準とし、排ガスの組成及び処理量が与えられ、製品二酸化炭素の純度と回収率も指定されている。この二酸化炭素回収プロセスに必要なユーティリティ（冷却水、スチーム、電気）の規格及びコストも同ガイドラインで定められている。経済性評価手法の更なる詳細は文献¹⁰を参照されたい。

3. 空気中からの直接回収、Direct Air Capture(DAC)

排出源からの回収に加え、大気中の二酸化炭素を回収する技術である Direct Air Capture (DAC) も世界中で技術開発が行われている。この空気中の低濃度二酸化炭素回収は、古くから潜水艦¹⁶ や宇宙船の乗組員室¹⁷ のために利用されてきた技術であるが、これを大気に適用し、大規模で低コスト・低エネルギーで二酸化炭素回収を行う技術が求められている。この DAC は、米国、カナダ、スイスなどで民間企業による実証装置が稼働している。この DAC においても吸着は有望な技術と認識されており、米国の Global Thermostat¹⁸ 社やスイスの Climeworks¹⁹ 社はいずれも固定化アミンを使った温度スイング吸着プロセスの実証プラントを稼働させている。

大気に含まれる二酸化炭素濃度は約 400 ppm と極めて低いため、この低濃度において吸着量が大きい吸着剤を選択する必要がある。本研究では、モノリスにコーティングされた MIL-101(Cr)-PEI-800 および mmen-Mg2(dobpdc) を考慮した(図4)。これらの MOF をコーティングしたモノリスの作成は既に報告されており²⁰、本研究ではモデリングと最適化を行い、プロセス性能と経済性の評価を行った²¹。

想定した DAC プロセスでは、図5に示される工程から成るサイクルを考案した。このプロセスの運転において、吸着剤が空気中の酸素により酸化されないよう注意を払う必要がある。ここでは、以下の5工程からなるサイクルを考案した。第1工程(Step 1)は 400 ppm の二酸化炭素を含む空気からの吸着工程である。これに続き、第2工程(Step 2)では真空ポンプで減圧し内部の酸素濃度を4%以下まで低下させる。これにより、後の工程で吸着剤が加熱された際に残存酸素で吸着剤が酸化されることを防ぐ。第3、および第4工程(Step 3、4)では蒸気を通すことでモノリスを加熱して昇温し、水蒸気と共に二酸化炭素を出口から回収する。こうして得られた水蒸気と二酸化炭素の混合ガスを後段で冷却し、水蒸気だけを凝縮することで純度の高い二酸化炭素を得る。また、第4工程においてモノリスの加熱に使われた水蒸気の一部は凝縮されてモノリスの空洞内に残る。この残った水は、第5工程(Step 5)においてモノリス空洞内を減圧することで蒸発し、この蒸発潜熱によりモノリスが冷却される。この冷却を十分行うことで温度を十分低くし、続く吸着工程(Step 1)に戻った時に空気中の酸素により吸着剤が酸化されるのを防ぐ。

このプロセスの経済性評価を行った。考慮した2種類の MOF のうち、MIL-101(Cr)-PEI-800 の回収コストは \$75-140/t-CO₂、mmen-Mg2(dobpdc) は \$60-190/t-CO₂ であった。これらのコスト指標の計算においては、吸着剤のコストや寿命などが大きな不確定要因であり、計算の仮定を変動させると上記の指標が大きく変わることも後に指摘されている²²。

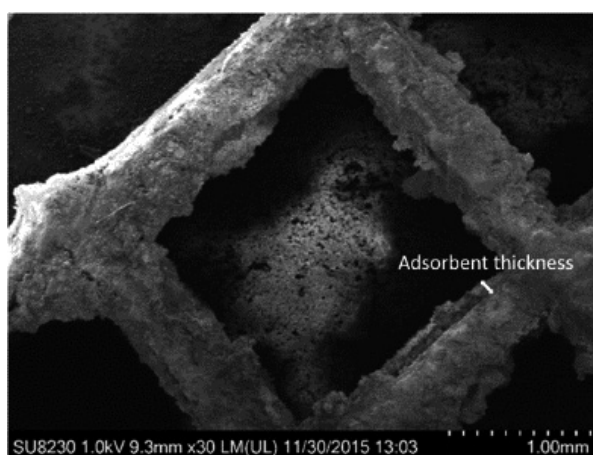


図4 モノリスにコーティングされた MOF, mmen-Mg2(dobpdc) (ACS Publications の許可を得て文献より転載²¹)

4. 最後に

地球温暖化という切迫した問題に対処するため、多分野における研究成果を結集させることが求められている。吸着分離が温暖化対策に貢献するためには、吸着剤開発と分離プロセス開発の2つの分野の研究者が協力しあって、この問題解決に取り組むことが必要である。後者の分野を専門とする著者も、前者の分野の研究者たちと共同研究することで新たな視点が生まれた。また新規の材料についての情報を得た著者らが、それを使った分離プロセスを設計して経済性を評価し、それを吸着剤開発へフィードバックすることで研究の指針にしようという生産的なサイクルが生まれた。

本稿では排出源からの回収、および DAC の2つの技術を紹介した。著者の知る限りでは、二酸化炭素分離の研究は排出源からの回収についてのものが先行していたが、近年になり DAC に関する研究が増えてきている。この技術は米国や欧州において民間企業により開発が進められているのは述べたとおりであるが、日本国内においても急激に関心が高まっている。将来は、排出源からの回収と DAC どちらか一方だけでなく、両方の技術が相互補完しながら温暖化ガス回収を行うべきであると著者は考える。

日本国内でも二酸化炭素回収プロセス開発の報告が

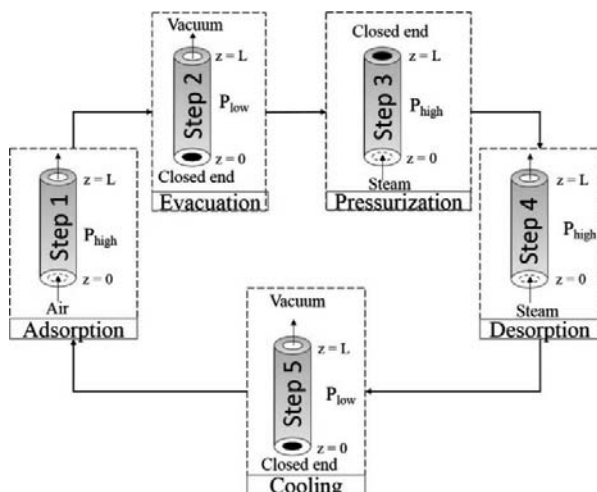


図5 DACプロセスサイクル (ACS Publications の許可を得て文献より転載²⁾)

近年で多くなっており、吸着分離プロセスも他の技術（膜、吸収など）と比較されることが多い。この際に、二酸化炭素単位重量当たりの回収コスト（ ¥/t-CO_2 ）や回収エネルギー（ GJ/t-CO_2 ）などの指標が使われており、本稿で紹介した研究もこれらの指標を用いた。しかしこれらの指標は、処理するガスの状態（温度、圧力、二酸化炭素濃度）、材料や装置の寿命、ユーティリティーのコスト、回収する二酸化炭素の回収率や純度など、数々の仮定のもとで計算を行って得られる数値である。これらの仮定を確認することなく上記の指標だけを比べて、異なる技術やプロセスの経済性を議論することには危険が伴うことを指摘しておきたい（米国と比べ、日本においてこのような議論が多い、と著者は感じている）。

謝辞

本稿で述べた内容は、主に著者が米国ジョージア工科大学に勤務していた時の研究成果である。これらは米国エネルギー省（US Department of Energy）国立エネルギー技術研究所（National Energy Technology Laboratory、DE-FE 0007804）、および全米科学財団（National Science Foundation）の研究助成により実施したものである。本稿の意見、結果、結論などは著者個人によるものであり、上記の機関を代表するものではない。

また、本稿で紹介した研究は多くの研究者たちと共同で行われた。ジョージア工科大学で以前の同僚であった Christopher Jones 教授、William Koros 教授、Ryan Lively 准教授、Matthew Realff 教授、同校でポ

スドクとして研究を行った Dr. Fateme Rezaei（現ミズーリ工科大学准教授）と Dr. Subramanian Swernath（現インド SABIC 社）、及び Trimeric Corporation の Katherine Searcy、そして元大学院生 Dr. Anshuman Sinha（現米国 Intel 社）、Dr. Jayashree Kalyanaraman（現米国 ExxonMobil 社）などである。関係者全員に改めて深く謝意を申し上げる。

【参考文献】

- 1) 経済産業省. カーボンリサイクル技術ロードマップ. 閲覧日 2020 年 6 月 13 日, <https://www.meti.go.jp/press/2019/06/20190607002/20190607002-1.pdf>.
- 2) R. P. Lively, R. R. Chance, B. T. Kelley, H. W. Deckman, J. H. Drese, C. W. Jones, and W. J. Koros, *Ind. Eng. Chem. Res.* **48**, 7314-7324, (2009).
- 3) U.S. Energy Information Administration. How Much of U.S. Carbon Dioxide Emissions Are Associated with Electricity Generation? 閲覧日 2020 年 6 月 13 日, <https://www.eia.gov/tools/faqs/faq.php?id=77&t=11>.
- 4) R. P. Lively, R. R. Chance, and W. J. Koros, *Ind. Eng. Chem. Res.* **49**, 7550-7562, (2010).
- 5) F. Rezaei, S. Subramanian, J. Kalyanaraman, R. P. Lively, Y. Kawajiri, and M. J. Realff, *Chem. Eng. Sci.* **113**, 62-76, (2014).
- 6) 川尻喜章, *Adsorption News*. **30**, 5-9, (2017).
- 7) Y. Fan, Y. Labreche, R. P. Lively, C. W. Jones, and W. J. Koros, *AIChE J.* **60**, 3878-3887, (2014).
- 8) J. Kalyanaraman, Y. Fan, R. P. Lively, W. J. Koros, C. W. Jones, M. J. Realff, and Y. Kawajiri, *Chem. Eng. J.* **259**, 737-751, (2015).
- 9) J. Kalyanaraman, Y. Fan, R. P. Lively, Y. Labreche, Y. Kawajiri, and M. J. Realff, *Comput. Chem. Eng.* **81**, 376-388, (2015).
- 10) S. Swernath, K. Searcy, F. Rezaei, Y. Labreche, R. P. Lively, M. J. Realff, and Y. Kawajiri, in *Comput. Aided Chem. Eng.*, F. You, Editor, Elsevier: Waltham, MA. vol. 36, p.253-278. (2015).
- 11) National Energy Technology Laboratory: US Department of Energy, Updated Costs (June 2011 Basis) for Selected Bituminous Baseline Cases, (2012).

- 12) National Energy Technology Laboratory: US Department of Energy, Quality Guideline for Energy System Studies (QGESS): Process Modeling Design Parameters, (2012).
- 13) National Energy Technology Laboratory: US Department of Energy, Quality Guideline for Energy System Studies (QGESS): Capital Cost Scaling Methodology, (2013).
- 14) National Energy Technology Laboratory: US Department of Energy, Bench-Scale and Slipstream Development and Testing of Post-Combustion Carbon Dioxide Capture and Separation Technology for Application to Existing Coal-Fired Power Plants, (2011).
- 15) National Energy Technology Laboratory: US Department of Energy, Quality Guideline for Energy System Studies (QGESS): Cost Estimation Methodology for Netl Assessments of Power Plant Performance, (2010).
- 16) R. Carey, A. Gomezplata, and A. Sarich, *Ocean Eng.* **10**, 227-233, (1983).
- 17) S. Satyapal, T. Filburn, J. Trela, and J. Strange, *Energy Fuels*. **15**, 250-255, (2001).
- 18) Global Thermostat. 閲覧日 2020 年 6 月 13 日, <https://globalthermostat.com/>.
- 19) Climeworks. 閲覧日 2020 年 6 月 13 日, <https://www.climeworks.com/>.
- 20) L. A. Darunte, Y. Terada, C. R. Murdock, K. S. Walton, D. S. Sholl, and C. W. Jones, *ACS Appl Mater Interfaces*. **9**, 17042-17050, (2017).
- 21) A. Sinha, L. A. Darunte, C. W. Jones, M. J. Realff, and Y. Kawajiri, *Ind. Eng. Chem. Res.* **56**, 750-764, (2016).
- 22) A. Sinha and M. J. Realff, *AIChE J.* **65**, (2019).



川尻 喜章

名古屋大学

大学院工学研究科物質プロセス工学専攻

未来社会創造機構マテリアルイノベーション研究所

教授、Ph.D.

- 1999 年 3 月 関西大学大学院工学研究科修士課程 修了
- 1999 年 4 月 オルガノ株式会社 (–2003 年 6 月)
- 2003 年 8 月 米国カーネギーメロン大学化学工学科 Ph.D. 課程 (–2007 年 7 月)
- 2007 年 10 月 独国マクデブルク市マックスプランク研究所 (Max-Planck-Institut für Dynamik komplexer technischer Systeme) ポストドクトラルフェロー、Alexander von Humboldt Fellow (–2008 年 8 月)
- 2008 年 9 月 米国ジョージア工科大学化学生体分子工学科 Assistant Professor
- 2015 年 7 月 同校 Associate Professor、終身在職権 (テニユア) 取得、Thomas Malone Faculty Fellow
- 2017 年 6 月より現職

特集

二酸化炭素分離回収・有効利用・貯留技術開発（CCUS）の最新動向

Current status of CCUS (Carbon dioxide Capture, Utilization and Storage)

公益財団法人地球環境産業技術研究機構
Research Institute of Innovative Technology for the Earth

清水 淳一、山田 秀尚
Junichi Shimizu, Hidetaka Yamada

1. はじめに

二酸化炭素（CO₂）を始めとする温室効果ガス（GHG）の排出削減は、人類共通の喫緊の課題である。気候変動に関する政府間パネル（IPCC）の第5次報告書（AR5）¹⁾によれば、CO₂の累積排出量と世界の平均気温の変化は、概ね比例関係にあると報告されている。つまり、世界の平均気温を何度であれ安定化させるためには、CO₂の累積排出量を一定に保つこと、すなわち、大気中への人為的なCO₂排出をゼロにする必要がある。

2016年11月に発効したパリ協定²⁾は、2020年以降のGHG排出削減に取り組むための国際枠組みである。パリ協定には世界共通の長期目標として、世界の平均気温上昇を産業革命以前に比べて2℃より十分低く保つとともに、1.5℃に抑える努力を追求する。また、できるかぎり早く世界のGHG排出量をピークアウトし、今世紀後半には、GHG排出量と森林等による吸収量のバランスをとること等が明記されている。

日本においても、パリ協定の枠組みを受けて、さまざまな政策が進められている。2019年6月に閣議決定された「パリ協定に基づく成長戦略としての長期戦略」³⁾では、最終到達点として「脱炭素社会」を掲げ、それを野心的に今世紀後半のできるだけ早期に実現するとともに、2050年までに80%のGHG削減に向け、大胆に施策に取り組むことが示されている。この中で、二酸化炭素分離回収・貯留（CCS）・有効利用（CCU）は、水素、再生可能エネルギー、蓄電池、原子力等と共に脱炭素化のカギとなる技術として取上げられている。

CCS及びCCUには、それぞれ次のような特徴がある。CCSは、様々な産業から発生する排ガス中のCO₂

を分離回収し、地中へ貯留する技術で、大規模にCO₂を削減することができる。一方、CCUは、分離回収したCO₂を利用する技術であり、外部不経済なCCSに対し、有価物を生み出すことができる。ただし、CO₂の排出量に比べて、利用規模が小さいことやCO₂の利用形態によっては、CO₂を固定化する期間が変わること等から、現時点ではCO₂の削減量は限定的と考えられる。なお、CO₂の利用状況について、国際エネルギー機関（IEA）のレポート⁴⁾では、世界中で有効利用されているCO₂は、毎年約2億3千万トンである。このうち、最も多いのは肥料製造（尿素）で全体の57%を占める。次いで石油増進回収（EOR）への利用が全体の34%を占める。これらを合わせると91%となり、直接利用がほとんどである。

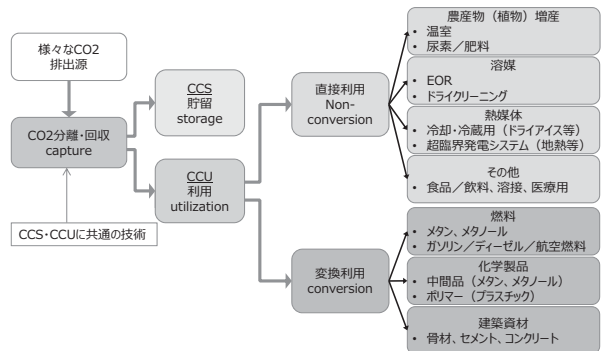


図1 CO₂利用経路（CCS・CCU）
出典：IEA レポート⁴⁾を元に作成

2. 世界の大規模 CCS プロジェクトの動向

世界の大規模 CCS プロジェクトは、Global CCS Institute (GCCSI)⁵⁾の整理によると、1972年の米国のCO₂-EORプロジェクトから始まり、1996年のノルウェーのSleipner（帯水層）、2014年のカナダのBoundary Dam (CO₂-EOR)を経て、2019年に稼働した豪州のGorgon（帯水層）まで、19件のプロジェクトが稼働中である（2020年5月時点）。

これら19件のプロジェクトを貯留タイプ別及びCO₂排出源（分離回収コスト）毎に整理する（図2）。

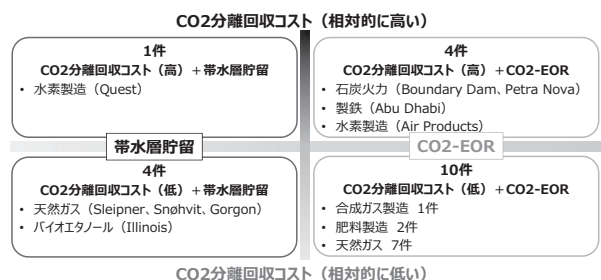


図2 大規模 CCS プロジェクトの整理
出典：GCCSI データベース⁵⁾を元に作成

貯留タイプ別の整理では、EOR が 14 件、帯水層貯留は 5 件である。CO₂ 排出源毎の整理では、天然ガス処理・肥料製造等のように相対的に分離回収コストが低いものが 14 件、石炭火力発電や製鉄所のように相対的に分離回収コストが高いものが 5 件である。

このように、現在稼働中の大規模 CCS プロジェクトは、EOR 目的のものが主流である。また、分離回収コストが低いものと EOR を組合せたケースは、10 件である。世界で導入されている CCS は、分離回収コストが相対的に低く、かつ EOR のような収益が得られる、着手しやすいケースから導入が進んでいると言える。

3. CCS・CCU の役割と課題

3.1 CCS の役割と課題

温暖化対策における CCS の役割は、各機関等のモデル分析等によって評価されている。例えば、IEA ETP 2017⁶⁾では、ベースラインとなる参照シナリオ (RTS) から 2100 年に 2℃ 以内に抑える 2℃ シナリオ (2DS) の CO₂ 排出量にするためには、2060 年時点に全体で 308 億トンの CO₂ 削減が必要とされている。このうち、CCS による削減量は約 49 億トンと評価され、全体削減量の 16% を担うとしている。これは、エネルギー効率改善による約 116 億トン (38%)、再生可能エネルギーによる約 110 億トン (36%) に次ぐ寄与率である。

このように CCS は、温暖化対策として期待されているが、現時点の導入量は必ずしも十分とは言えない。前述の世界で稼働中の 19 件の大規模 CCS プロジェクトの CO₂ 回収量は、約 3,500~3,600 万トン/年である。この CO₂ 回収量から ETP 2017 の 2 DS で評価された 2060 年時点の CCS による CO₂ 削減量の 49 億トンまで拡大するには、現在の 130 倍以上の導入が必要である。

CCS が広範に普及しない原因の一つは経済性である。石油増産による収益が見込まれる EOR であれば、市場原理で導入が進む場合もあるが、全ての油田に有効であるというわけではない。また、温暖化対策として大規模に普及するためには、より貯留ポテンシャルの多い帯水層への貯留が必要となる。さらに、CO₂ の排出量が多い発電部門及び産業部門等への展開が必要になる。つまり、温暖化対策のためには、発電部門や産業部門等から CO₂ を分離回収し、帯水層へ貯留するケースが増える必要がある。ただし、このような組合せは、相対的に CCS のコストが高くなる。

図 3 は、米 国 の National Energy Technology

Laboratory (NETL) が試算した新設石炭火力発電における CCS の導入の有無による発電コストの比較⁷⁾である。主な条件は、出力 55 万 kW 級 (亜臨界・超臨界)、回収率 90% (化学吸収法: Shell Cansolv)、輸送距離 100 マイル (約 62 km)、米国中西部の陸域 (帯水層) への貯留である。

超臨界石炭火力の発電コストの試算では、通常発電コスト \$82.3/MWh から、CCS を導入することで \$142.8/MWh へ、\$60.5/MWh (約 74%) 上昇する。このうち、輸送及び貯留による発電コストの上昇分は、\$9.6/MWh であるから、分離回収による発電コストの上昇分は、\$50.9/MWh となる。分離回収のための追加コスト (設備費、燃料費 (回収のための熱エネルギー増分)、吸収液、ポンプ動力等) が、発電コストの上昇に大きく影響している。

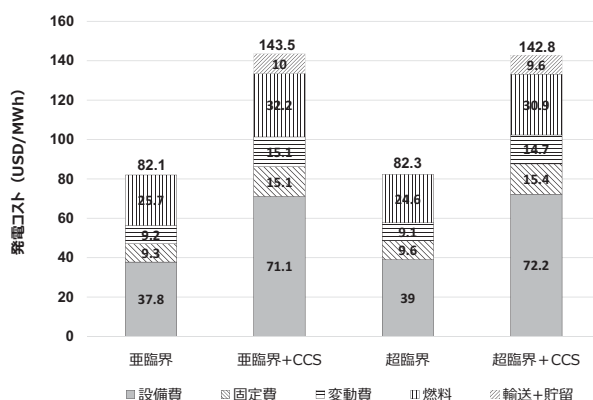


図 3 米国における石炭火力発電コストの比較
出典: NETL 試算結果⁷⁾を元に作成

3.2 CCU の役割と課題

CCS が普及するためには、CCS が事業として成立することが必要で、そのためには経済性を高めることが重要となる。そこで注目されているのが CO₂ を利用する CCU である。CCS と CCU を組み合わせ CCUS とすることで、プロジェクト全体の経済性の向上を図る。EOR は CO₂ の直接利用の一例である。

CCUS の取組みは各国で進められている。英国政府は、2018 年 11 月、CCUS に関するアクションプラン⁸⁾を公表した。2020 年代半ばに英国で最初となる CCUS 施設を立ち上げることやビジネス環境の整備、CCUS インフラの導入、コスト削減のための技術革新等を明記している。

また、欧州で進められている ALIGN-CCUS プロジェクト⁹⁾は、34 の研究機関と企業とのパートナーシップからなる CCUS プロジェクトである。2025 年までに欧州 5 か国の 6 つの工業地帯を経済的に強固な低炭素センターにすることを目指しており、6 つの

ワーキングパッケージに分かれ、CO₂分離回収、大規模CO₂輸送、安全なCO₂貯留、大規模エネルギー貯蔵・転換におけるCO₂利用、CCUSの社会受容を検討している。

日本では、2019年6月にカーボンリサイクル技術ロードマップ¹⁰⁾が策定される等、CCUSの取組みが加速している。この技術ロードマップでは、化学品合成、燃料合成、鉱物へのCO₂固定化、人工光合成等を対象としている。まずは、2030年に水素が不要なものや高付加価値なものから導入を始め、2050年以降に需要が多い汎用品に拡大することを目指している。なお、共通技術であるCO₂分離回収技術のコスト目標について、現行、火力発電所等の燃焼排ガスからのCO₂分離回収コストは、4,000円/t-CO₂程度であるが、2030年には1,000～2,000円/t-CO₂、2050年には1,000円以下/t-CO₂まで低減することを目指している。また、多くの技術開発においては、安価なCO₂フリー水素が重要である。

CCUSは、CO₂削減のために重要な技術である。CCUSの導入を推進させるためには、CCS・CCUの共通技術である、CO₂分離回収技術が鍵を握っている。

4. CO₂分離回収技術の概要

4.1 CO₂分離回収法

CO₂分離回収法は収着法（吸収法及び吸着法）、膜分離法、深冷分離法に大別される¹¹⁾。各分離法によるCO₂分離回収スキームを図4に示す。

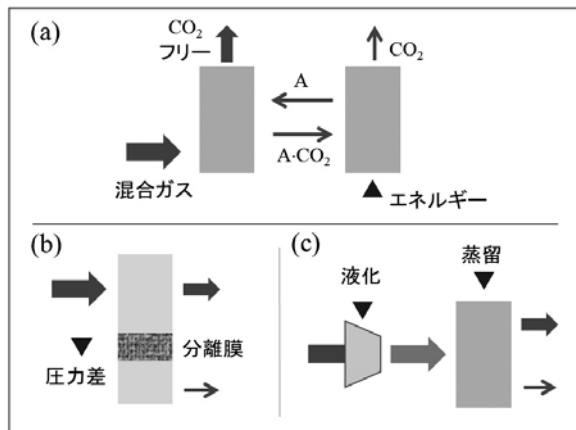


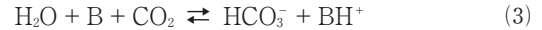
図4 CO₂分離回収スキーム：
(a)吸収法及び吸着法；(b)膜分離法；(c)深冷分離法
IPCC 特別レポート¹¹⁾を元に作成

吸収法及び吸着法では、吸収液あるいは吸着剤（収着剤A）とCO₂との選択的相互作用を利用する。



収着現象は、CO₂の化学反応変化を伴う場合（化学吸

収あるいは化学吸着）とそうでない場合（物理吸収あるいは物理吸着）がある。最も頻繁に利用されるCO₂の化学反応は、アミン（R¹R²NH）の窒素原子との結合によるカルバメート化(2)やアミン等のプレnstेटド塩基(B)存在下での重炭酸イオン化(3)である¹²⁾。



このような可逆反応を温度あるいは圧力のスイングで繰り返すことによって、混合ガスからCO₂を回収することが可能である。

膜分離法では、分子種によって異なる膜透過速度の違いを利用して分離を行う。分子が膜を透過する速度は、分子のサイズや膜材料との相互作用に依存する。クヌーセン拡散、吸着拡散、分子篩、溶解拡散、促進輸送など様々な透過機構があるが、一般に、透過速度とガス選択性にはトレードオフがある。したがって、処理速度を大きくすると、回収純度は低下する傾向がある。吸収法や吸着法との大きな違いは、膜分離法は再生工程を必要としないということである。ただし、先に述べたトレードオフによって、現実的な処理速度で高純度のCO₂を回収することは難しいとされており、多段膜分離プロセスや他法とのハイブリッドプロセスが採用されることも多い。

深冷分離では、対象の混合ガスを圧縮・冷却して液化した後、蒸留分離を行うため、原理的に、高純度のCO₂を得ることができる。ただし、混合対象ガス全体を液化する必要があることから、CO₂濃度の高いガスに用いるのが一般的である。

4.2 CO₂分離回収エネルギー

CO₂分離回収コスト削減において重要な役割を果たすが、所要エネルギーの低減である。カーボンリサイクル技術ロードマップ¹⁰⁾は、所要エネルギーの現状を2.5 GJ/t-CO₂とし、2030年のターゲットとして、1.5 GJ/t-CO₂（低圧ガス）及び0.5 GJ/t-CO₂（高圧ガス）を掲げている。

CO₂分離回収エネルギーの下限値を理論的に与えるために、次式を用いることがある。

$$E_{\min} = RT \ln(P_i/P_r) \quad (4)$$

Rは気体定数である。本式のE_{min}は、絶対温度Tの準静等温過程で、理想気体の分圧P_iがP_rまで増大する際に伴う仕事量にほかならない。

ここで、常温常圧（25℃、100 kPa）で、CO₂濃度10%（石炭燃焼排後ガス中のCO₂濃度に相当）の混

合ガスを理想気体として取り扱い、CO₂分圧 99 kPa に濃縮（回収純度 99%）する準静等温過程を考え、式(4)からエネルギー下限値を算出すると、0.13 GJ/t-CO₂ が得られる。この値は、上述の所要エネルギーに比べかなり小さい。常温常圧で CO₂ 濃度 0.04%（空気中の CO₂ 濃度に相当）を 99 kPa に濃縮する場合でも、エネルギー下限値は 0.44 GJ/t-CO₂ にしかない。これは、エネルギー下限値が、化学反応や分子間相互作用、さらには分離操作に伴うエネルギー損失を無視し、分離前後の状態間での CO₂ の熱力学的エネルギー差のみによって決められているからである。

吸収液あるいは吸着剤による反応(1)はほとんどの場合、発熱的である。発熱量が大きければ、逆反応はその分だけ吸熱的であり、吸着剤を再生するための所要エネルギーが増大する。最も代表的な吸収液である 2-アミノエタノール水溶液（30 wt%）の場合、化学反応(2)に伴う発熱量だけで約 2 GJ/t-CO₂ に相当する¹²⁾。これに、加熱再生のための昇温（～120℃）に必要な顕熱と再生時の溶液の気化で消費される潜熱を合わせると、所要エネルギーは約 4 GJ/t-CO₂ にも達する。これらの値は、常圧の燃焼後排ガスを対象として報告されることが多いが、CO₂ 分圧が高いほど所要エネルギーは小さくなり、また、回収率（供給 CO₂ 量に対する回収 CO₂ 量の割合）にも依存するため注意が必要である。特に、天然ガスや合成ガスなどで、CO₂ 分圧が高いガス（～数 MPa）を対象とする場合、物理吸収や物理吸着、あるいは比較的反応性の低い化学吸収や化学吸着による分離を行うことでも分離回収エネルギーは小さくなる。

膜分離法は、再生工程を必要せず、供給側と透過側の分圧差をドライビングフォースとして、CO₂ を分離するため、所要エネルギーの低減が期待できる。CO₂ を透過させる膜の場合、CO₂ 分圧が高いほどアドバンテージが大きくなる。CO₂ 非透過膜で CO₂ を供給側で回収する場合は、高圧 CO₂ を得ることできるというメリットがある。

深冷分離法は、空気を分離して、高純度ガスを製造する実用技術として確立された手法である。しかし、液化及び蒸留を伴うため、特に、対象ガスが低濃度の場合には多大なエネルギーを消費する。化石燃料発電所での CO₂ 回収に適用した場合、600～660 kWh/t-CO₂ の電力を要するとの試算があり¹³⁾、CCS には不向きと考えられる。

4.3 大規模 CCS プロジェクトにおける CO₂ 分離回収技術

先に世界の大規模 CCS プロジェクトについて述べた。そのデータベースを作成した GCCSI は、年間回収量 400,000 t-CO₂ を超えるものを大規模と定義している（ただし、石炭火力発電所では >800,000 t-CO₂/y）。その内、世界最大の回収規模（～1500,000 t-CO₂/y）を誇る Petra Nova CCUS プロジェクト¹⁴⁾では、CO₂ 回収に KS-1（関西電力㈱）と三菱重工業㈱の共同開発）と呼ばれるアミン液を用いる化学吸収法が採用されている。石炭火力発電の燃焼排ガスを対象とした本プロジェクトは、図 2 で示した通り、相対的に分離回収コストが高いものに分類される。先に述べたように、低 CO₂ 分圧のために分離回収エネルギーが大きくなることのほか、低圧のため大型の処理設備が必要なこと、石炭火力発電の燃焼後排ガスが多くの不純物を含むために事前処理工程が必要なことなどもコスト増大の要因である。

図 5 に世界で稼働中の大規模 CCS プロジェクトの回収技術内訳を示す。アミン液を用いた吸収法が低圧と高圧ガスを対象に計 9 件を占める。先に、導入されている CCS は、分離回収コストが相対的に低く、着手しやすいケースということを述べたが、アミン（高圧）と物理吸収の計 12 件はこれに相当する。

吸収法以外の吸着法および膜分離法の導入例はそれぞれ 1 件のみである。その理由は、技術成熟度の高い吸収法が早期にスケールアップを実現できたからであると言える。しかし、今後、小中規模の CCUS を含め、より難易度の高い対象に回収技術を実装していくためには、吸収法以外の回収技術の革新と成熟が益々重要である。

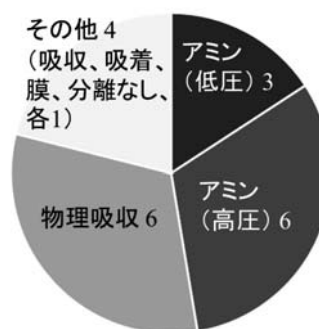


図 5 稼働中の大規模 CCS 設備の回収技術内訳
GCCSI データベース⁵⁾を元に作成

5. RITE の CO₂ 分離回収技術開発

RITE は CO₂ 分離回収を地球温暖化対策のキーテクノロジーとして位置づけ、いち早くその研究開発を実

施してきた。各種排出源の規模、ガス組成、CO₂分圧などによって適した分離回収法を提示すべく、複数の技術の開発を進めている。その中で、製鉄所の高炉ガスを対象に開発した省エネルギー型化学吸収液は既に>100 t-CO₂/d 規模のCCUで商用化されている。さらに、RITEが開発した革新的な材料（固体吸収材や分子ゲート膜）を用いて、石炭火力発電所の燃焼後排ガス（低圧）やシフト反応後の石炭ガス化ガス（高圧）を対象としたCO₂分離回収技術の開発を推進し、本稿で述べた我が国のロードマップにある目標の達成を目指している（新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）委託事業）。詳細は文献^{12,15)}を参照していただきたい。

6. おわりに

本稿で述べたように、地球温暖化対策として、CCUS、特に大規模CCSの早期社会実装が不可欠である。そのためには、基盤技術であるCO₂分離回収技術の低コスト化と成熟が重要である。2020年1月、政府の統合イノベーション戦略推進会議はパリ協定の長期戦略等に基づく「革新的環境イノベーション戦略」¹⁶⁾を決定し、2050年までの確立を目指す革新的技術テーマの一つに「CCUS/カーボンリサイクルの基盤となる低コストなCO₂分離回収技術の確立」を挙げた。CO₂分離回収技術は日本が優れた技術を誇る分野である。世界の温暖化防止に貢献できるよう、引き続き、産官学が一体となって着実な技術開発と実用化展開が進むことが望まれる。

【参考文献】

- 1) IPCC, Climate Change 2014 Synthesis Report Summary for Policymakers
- 2) UNFCCC 事務局 (UN Climate Change) ホームページ, (<https://unfccc.int/process-and-meetings/ther-paris-agreement/the-paris-agreement> (2020/05/28))
- 3) 経済産業省, パリ協定に基づく成長戦略としての長期戦略 (2019)
- 4) IEA, Putting CO₂ to Use (2019)
- 5) GCCSI ホームページ, Facilities Database <https://co2re.co/FacilityData> (2020/05/28)
- 6) IEA, Energy Technology Perspective 2017
- 7) NETL, Cost and Performance Baseline for Fossil Energy Plants Volume 1a (2015)
- 8) UK, Clean Growth The UK Carbon Capture Usage and Storage deployment pathway (2018)
- 9) ALIGN-CCUS プロジェクトホームページ, <https://alignccus.eu/about-project> (2020/06/01)
- 10) 経済産業省, カーボンリサイクル技術ロードマップ (2019), (協力府省内閣府文部科学省環境省)
- 11) IPCC, Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage (2005)
- 12) S.-I. Nakao et al., Advanced CO₂ Capture Technologies, SpringerBriefs in Energy, Springer (2019)
- 13) G. Gottlicher, R. Pruschek, Energy Convers. Manag. 38, S173 (1997)
- 14) 藤原勝憲, 石油技術協会誌, 84, 114 (2019)
- 15) S.-I. Nakao et al., RITE Today, 15, 4 (2020)
- 16) 首相官邸ホームページ, <https://www.kantei.go.jp/jp/singi/tougou-innovation> (2020/05/28)



清水 淳一

公益財団法人地球環境産業技術研究機構 (RITE) 企画調査グループ

- 1997年4月 中国電力株式会社（火力発電、環境管理に関わる業務に従事）
- 2014年4月 RITE（CCSの経済性、制度の枠組み等の調査に従事）
- 現在に至る。



山田 秀尚

公益財団法人地球環境産業技術研究機構 (RITE) 化学研究グループ

- 2006年1月 京都大学大学院博士課程修了
- 2008年11月 RITE（CO₂分離回収技術の研究開発に従事）
- 現在に至る。

CO₂ 貯留技術と苫小牧 CCS 実証試験

Storage Technology of CO₂ and Tomakomai CCS Demonstration Project

日本 CCS 調査株式会社
Japan CCS Co., Ltd.
萩原 利幸
Toshiyuki Hagiwara

1. はじめに

地球温暖化について、CO₂ の累積総排出量と世界平均地上気温の応答はほぼ比例関係にあり、温暖化抑制のためには、人為的な CO₂ 排出量を制限する必要があると指摘されている¹⁾。2015 年の COP 21 のパリ協定では、世界の平均気温上昇を産業革命以前に比べて 2℃ より十分低く保ち、1.5℃ に抑える努力をすること、そのため、できるかぎり早く世界の温室効果ガス排出量をピークアウトし、21 世紀後半には、温室効果ガス排出量と（森林などによる）吸収量のバランスをとることなどが目標として掲げられた²⁾。

CCS (Carbon dioxide Capture and Storage) とは、火力発電所や工場等で発生する CO₂ を大気中に排出せずに回収して地中へ貯留する技術である。CO₂ を利用する技術と合わせて CCUS (Carbon dioxide Capture, Utilization and Storage) と呼ばれており、再生可能エネルギーの利用拡大やエネルギー利用の効率化等とともに地球温暖化対策の一つとして世界的に期待されている。IEA (国際エネルギー機関) の見通しでは、2060 年までの累積 CO₂ 削減量の 14% を担うことが期待されている³⁾。

当社は、経済産業省、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下、「NEDO」と称する。）の事業を受託して、2012 年度から 2020 年度の 9 年度に渡って、苫小牧における CCS 大規模実証試験に係る下記の事業（以下、「本事業」）と称する。）

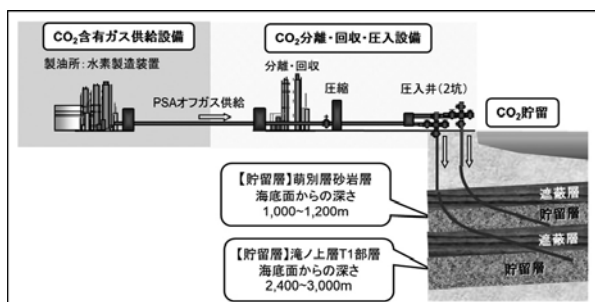


図 1. 1 事業全体フロー図

を実施している。本事業の全体フロー図を図 1. 1 に示す。

2012 年度から 2015 年度にかけて設備の設計・建設・坑井掘削等の CCS 実証試験の準備を行った後、2016 年 4 月からは年間 10 万 t 規模の CO₂ の圧入を開始し、2019 年 11 月 22 日に目標としていた累計 CO₂ 圧入量 30 万 t を達成した。

本事業はロンドン条約 1996 年議定書を反映した国内法（海洋汚染防止法）に基づく海底下 CO₂ 貯留であり、世界的にも以下の点で高い評価を得ている。

- ・世界で実施されている事業の大半は原油回収のための CO₂ 圧入 (CO₂-EOR) であるが、本事業では実際の工場排出ガスから分離回収した CO₂ の深部塩水層への圧入であること。
- ・アミン液を使用した化学吸収法において、CO₂ の吸収を 2 段階で行う「2 段階吸収法」を取り入れることで、高い省エネルギーを実現したこと。
- ・陸上から海底下の地層へと高傾斜井を掘削して CO₂ を圧入することで、洋上設備を用いる場合に比べてコストの低減を図ったこと。
- ・地震国である日本での実証であることから、地層の圧力・温度や海洋環境に加えて、微小振動や自然地震も対象としたモニタリングシステムを適用したこと。
- ・市長や漁業協同組合などの関係者の好意や地域住民の理解を得て、市街地に近い場所で行った世界初の CCS であること。

苫小牧の CCS 実証試験センターには、これまでに世界 50 カ国から約 1,400 名以上の方々が視察や取材に訪れている。(2020 年 3 月現在)

本稿は、これまでに弊社が経済産業省および NEDO より受託した委託事業での成果の一部をまとめたものであり、これまでの成果、実証および本事業を通じて得られた課題や今後の取組への示唆等を報告する。

2. 苫小牧における実証試験

苫小牧における実証事業の関連設備配置図を図 2. 1 に示す。

CCS 実証プロジェクトの実施箇所としては、実地調査と国の検討会などを通じて、全国 115 ヶ所の候補地点から絞り込まれた結果、2012 年 2 月に苫小牧が選定され、日本初の本格的な CCS 実証プロジェクトが開始された。苫小牧が選定された理由としては、CCS 実証試験を行うのに必要な環境として、CO₂ を貯留す

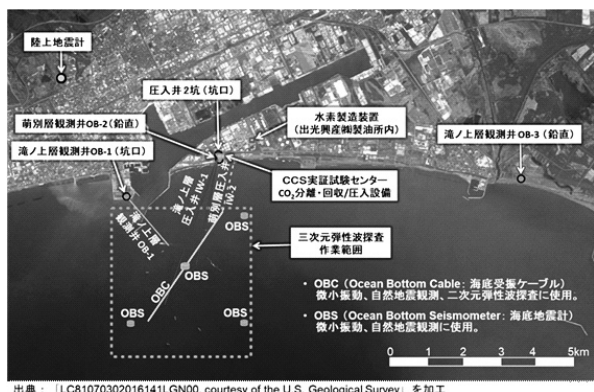


図 2. 1 事業関連設備配置図 (苫小牧西港)

るのに適した地層やその地層に関するデータが存在すること、近隣にCO₂の大規模な排出源（工場・発電所など）が存在すること等があげられる。

出光興産(株)北海道製油所（以下、「製油所」と称する。）の水素製造設備から発生する、約52%濃度のCO₂を含むPSA（Pressure Swing Adsorption）オフガスの一部を1.4 kmの長さのパイプラインにより分離回収設備まで輸送してCO₂を回収し、陸上の2坑の圧入井により、海岸から3～4 km離れた海底下の異なる深度の2層の貯留層である萌別層および滝ノ上層へ圧入・貯留するものである。

本事業の全体スケジュールを図2. 2に示すように2012年度から2020年度までの9年間にわたっている。



図 2. 2 全体スケジュール

2012年度から2015年度までの4年間で、本事業に必要な諸設備の設計・建設・試運転、坑井の設計・掘削およびモニタリング設備の設計・設置を完了した。この期間には、ベースラインデータとなるCO₂圧入前の各種データ取得のため、2013年度に二次元弾性波探査を、2013年度から2014年度には「海洋汚染等および海上災害の防止に関する法律」（以下、「海洋汚染防止法」と称する。）に対応した海洋環境調査（四季調査）を実施し、2014年度末からは、完成したモニタリング設備により圧入開始前の連続観測を開始した。

3. 地上設備

CO₂供給源である製油所の水素製造設備では、PSA方式により高純度の水素が石油精製のために製造されている。水素を回収した後のPSAオフガスには約52%のCO₂が含まれており、分離・回収設備では、このオフガスから活性アミン系化学吸収プロセスにより濃度99%以上の高純度CO₂を回収する。

図3. 1にCO₂分離・回収フローを示す。PSAオフガスは圧縮機で0.81 MPaGまで昇圧された後、吸収塔下部充填槽で中濃度アミン液によりCO₂供給量の60～70%が粗く吸収され、次に吸収塔上部充填槽に上昇し、30～40%の残存CO₂が低濃度アミン液によって濃度0.1%以下まで吸収される。吸収塔底部から排出される高濃度アミン液は低压フラッシュ塔に送られ、減圧効果（0.06 MPaG）と放散塔頂部から低压フラッシュ塔に供給されるCO₂に同伴される余剰熱（水蒸気）による加熱効果により、吸収したCO₂の60～70%程度を放散し、中濃度アミン液となり、その大部分は外部から加熱することなしに吸収塔下部に循環される。

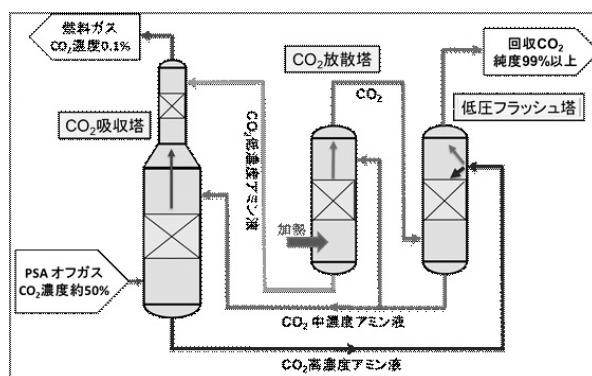


図 3. 1 CO₂分離回収フロー

本事業では、二段吸収法（吸収塔の上段に低濃度アミン液、吸収塔下段に中濃度アミン液をそれぞれ供給する）を採用し、さらに低压フラッシュ塔を設置して分離・回収のためのエネルギー消費量の大幅低減を可能にした。

回収CO₂の純度は海洋汚染防止法で定める分析方法（ガスクロマトグラフ法および化学吸収法）に基づいて定期的に分析した結果、平均99.4%（乾式基準）で同法の定める基準（海洋汚染防止法で定める特定CO₂ガス）である99%以上を満たすものであることを確認しつつ圧入・貯留された。

なお吸収塔の塔頂から排出されるCO₂分離・回収後のオフガスは約80%の水素と約12%のメタンを主成分とする燃料ガスであり、CO₂放散塔においてアミ

ン溶液から CO₂ を分離させるための熱源および、分離・回収／圧入設備全体のための自家発電の燃料として利用した。

4. 圧入設備

回収した CO₂ は、隣接する圧入設備で圧入に必要な圧力まで遠心式圧縮機で超臨界状態（7.38 MPa、31.1℃ 以上）まで圧縮され、2 坑の圧入井を通して海底下の貯留層に圧入・貯留される。圧入井は陸上沿岸部の坑口地点から高傾斜にて沖合の海底下へ向けて掘削された大偏距井であり、図 4.1 に示す萌別層圧入井では、掘削長 3,650 m、鉛直深度 1,188 m、最大傾斜角約 83° で、坑口位置から坑底までの水平距離（水平偏距）が 3,058 m の大偏距井（水平偏距と垂直深度の比が 2 以上の傾斜井）であり、わが国の坑井で最大のものである。

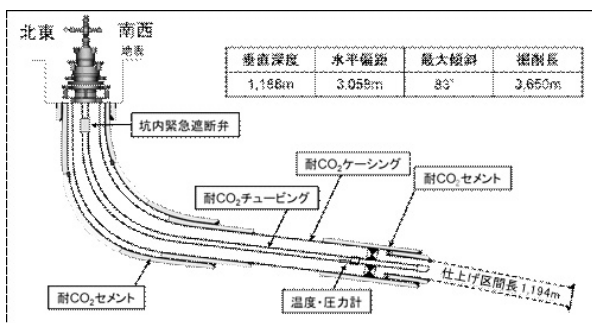


図 4.1 萌別層圧入井 IW-1 の形状（模式図）

大偏距井の掘削は、高傾斜の非常に長い沿角区間を掘削しなければならないため、高トルク・高ドラグ、不十分なホールクリーニング、坑壁の不安定、ケーシングの降下・設置の困難等を克服する高い技術力が要求される。圧入井を陸域から海底下に向けた傾斜井として掘削したことで、港湾の運行と漁業に対する影響を低減するとともに、リグレートが高い移動式リグや開発に要するプラットフォーム等の設備を必要とする洋上掘削に比べて掘削コストの大幅な削減を実現した。

CO₂ の圧入は、2016 年 4 月に開始された。圧入に際しては、予め貯留層上部を破壊することの無いように設定された上限圧力を上回らないように、圧入圧力を制御した。2019 年 11 月 22 日には 300,110 t となり目標である 30 万 t を達成し、圧入を停止した。今後は全体スケジュールに則り、2020 年度末までモニタリングを継続実施する予定である。

5. モニタリングと海洋環境調査

本事業では、貯留層地点周辺における微小振動観測や海洋環境調査、圧入した CO₂ の挙動（移動、広がり）等のモニタリングを実施して CO₂ が貯留層内に安全に貯留されていることを確認している。表 5.1 にモニタリング項目を示す。

表 5.1 モニタリング項目

観測設備／作業	モニタリング項目
圧入井・プラント設備	坑内：温度・圧力 坑口：圧入温度・圧力・CO ₂ 圧入量
観測井	坑内：温度・圧力 微小振動、自然地震
常設型海底受信ケーブル（OBC）	微小振動、自然地震 二次元弾性波探査の受信
海底地震計（OBS）	微小振動、自然地震
陸上設置地震計	微小振動、自然地震
二次元弾性波探査	貯留層中の CO ₂ 分布範囲
三次元弾性波探査	貯留層中の CO ₂ 分布範囲
海洋環境調査	海洋データ（物理・化学的特性、生物生息状況等）

貯留地点近傍において圧入との関連を疑うべき微小振動および自然地震を検知するため、3 坑の観測井に設置された地震計と温度圧力計、常設型海底受信ケーブル（OBC：Ocean Bottom Cable）、4 ケ所の海底地震計（OBS：Ocean Bottom Satellite）および 1 ケ所の陸上地震計により連続観測を実施中であり、これまで CO₂ の圧入に起因する微小振動は認められていない。図 5.1 にモニタリングシステムの概要を示す。

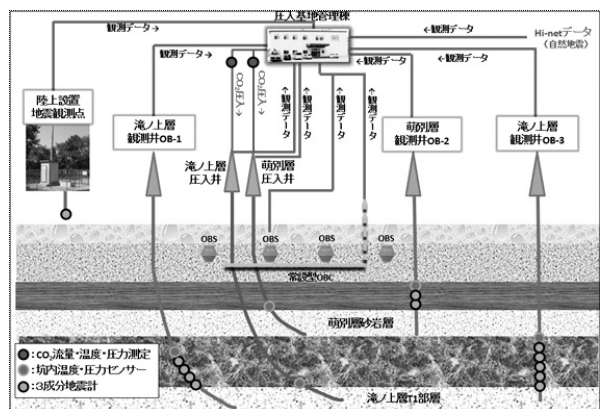


図 5.1 モニタリングシステムの概要

なお圧入中の 2018 年 9 月 6 日に北海道胆振東部地震が発生した。地震の規模は M 6.7、震源は胆振地方中東部の深さ 37 km を震源と気象庁は発表し、分離回収設備においても震度 5 弱相当の揺れを観測したが、

当該地震による被害や異常は認められなかった。地層の圧力と温度の値の連続観測では、CO₂の漏洩を示唆するデータは確認されず、地震発生後に開催した第3者を含む検討会においてもCO₂圧入と当該地震の因果関係があるとは考えられないとの共通認識が得られた⁴⁾。

圧入したCO₂の挙動把握には石油探査で一般的な弾性波による反射法地震探査（以下「弾性波探査」）が応用されている。海上にてエアガン人工震源により弾性波を発生させて地下から反射してきた信号を水中の受振器で観測し、この観測記録からデータ処理により反射記録断面を作成して、地層の構造変化や地層の性質を連続的に把握する技術である。本事業では、圧入前のベースラインデータと圧入中および圧入後の観測データとを比較してその差分を得ることにより、圧入したCO₂に起因すると推定される反射波の振幅から地下での貯留状態を把握している。図5.2に反射記録断面と地下での貯留状態解析図の例を示す。

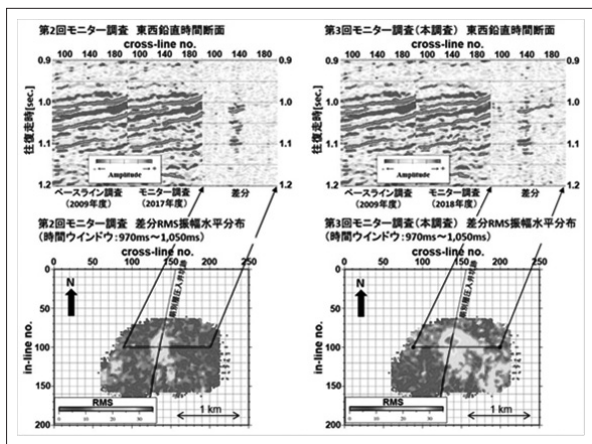


図5.2 反射地震探査法を用いたCO₂貯留状態評価（左が2017年度、右が2018年度）

我が国におけるCO₂の海底下の地中貯留は、海洋汚染防止法に則り、環境大臣の許可を得て実施するものである。許可を得たCCS事業者（本事業では経済産業省）は、申請時に提出する「監視計画」に基づいて監視を実施し、CCSが計画に従い安全に行われていることを確認しなければならない。本事業の「監視計画」では、貯留層の温度・圧力の観測や弾性波探査によるCO₂の分布範囲の把握に加えて、海洋環境調査として、海域の流況観測、採水・採泥等による水質・底質・プランクトン・底生生物の調査、海底面のビデオカメラ撮影による底生生物の観察・気泡の発生の有無の観察等を年4回（四季調査）実施している。圧入井と観測点の位置を図5.3に示す。これまでの調査

では、貯留前のベースラインの結果と大きな相違は見られていない。

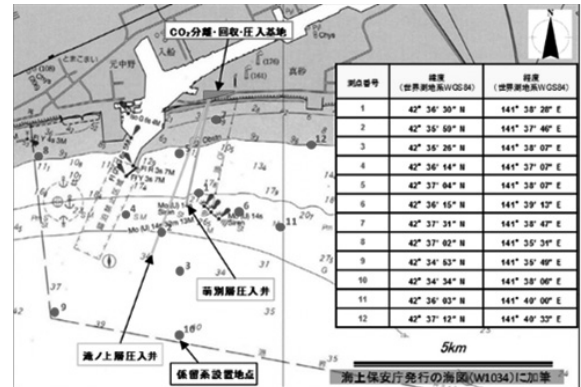


図5.3 調査海域と観測点位置（苫小牧西港）

6. 実用化にあたっての課題

国内で早期にCCSを実用化する際の大きな課題を以下に列挙する。

- ・CO₂を地中に安定して大量貯留できる適地の特定
- ・分離回収法におけるアミン吸収液、固体吸収材、分離膜などの実証および低コスト化の検証
- ・安全性確保のための最適なモニタリング手法や貯留技術の適用に向けた検証
- ・排出源と貯留適地が離れている場合における船舶、パイプラインによる長距離輸送の検討及び実証
- ・CCSの実施に際する事業法となる関係法令の整備と適切な保安管理体制構築
- ・インセンティブを含む導入促進施策の整備
- ・ステイクホルダーとの社会的合意に基づく事業実施体制構築と責任主体の明確化
- ・地域社会の理解と協力を得た良好な関係のもとでの事業実施体制構築

7. CO₂の有効利用

CCUSでこれまで一般的だったのは、CO₂-EOR（Enhanced Oil Recovery、原油増進回収技術）と呼ばれる手法である。EORでは通常、油田に天然ガスや水などを圧入して原油の回収率を高めるが、圧入流体としてCO₂を用いるのがCO₂-EORである。また、一般的なCO₂の利用先としては、ドライアイスや溶接などに直接利用する方法があるが、こうした方法だけでは、利用されるCO₂の量は限られている。

そこで、CO₂を「資源」ととらえ、素材や燃料に再利用することで大気中へのCO₂排出を抑制するための研究開発を進めていこうとする取り組みが、経済産

業省が提唱する「カーボンリサイクル」である。CO₂の利用先としては、①化学品、②燃料、③鉱物、④その他が想定されている。分類の概要を図6.1に示す。

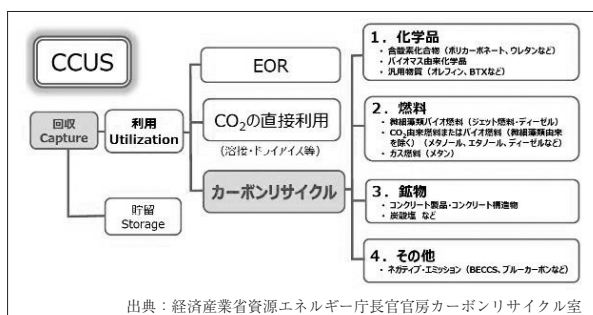


図6.1 CCU分類図

当社は、三菱日立パワーシステムズ、三菱重工エンジニアリングおよび三菱ガス化学の3社がNEDOより受託した「苫小牧のCO₂貯留地点におけるメタノール等の基幹物質の合成によるCO₂有効利用に関する調査事業」における調査の一部として、苫小牧CCS実証試験センターでのメタノール等の基幹物質の合成に必要な原料ガス、ユーティリティ等の供給、協調運転に関する調査を実施する予定であり、CCUS技術の調査事業に貢献していく所存である。

[参考文献]

- 1) IPCC Fifth Assessment Report (AR 5)
- 2) 21st Conference of the Parties to the United Nations Convention on Climate Change (COP 21)
- 3) IEA Energy Technology Perspective 2017
- 4) 北海道胆振東部地震のCO₂貯留層への影響等に関する検討報告書（2018年11月日本CCS調査株式会社）
<https://www.japanccs.com/news/190913/>



萩原 利幸
日本CCS調査株式会社
貯留技術部長

1984年3月 東京大学工学部資源開発工学科卒
同年4月 石油資源開発株式会社入社
2012年10月 相馬プロジェクト本部事業計画部長
2017年4月 広域ガス供給本部事業計画部長
2020年1月 出向、現職

メタネーション大規模実証に向けた 基盤研究および CO₂ 分離回収と 利用の統合プロセスに関する研究開発

Methanation and Energy Saving CO₂ Capture by
H₂ Gas Stripping for Integration of CO₂
Separation and Utilization Processes

名古屋大学大学院工学研究科
Graduate School of Engineering, Nagoya University

則永 行庸、張 煒、チェ チョルヨン
柳瀬 慶一、チャン クウイン、町田 洋
Koyo Norinaga, Wei Zhang, Cheolyong Choi,
Keiichi Yanase, Khuyen VB Tran, Hiroshi Machida

1. 緒言

CO₂ 回収貯留 (CCS) の課題として、CO₂ 分離回収に大きなエネルギーを必要とすること、CO₂ 漏洩リスクに伴う超長期監視の必要性を挙げることが出来る。CO₂ 分離回収の省エネルギー化と、回収 CO₂ を貯留するばかりでなく、CO₂ を有効利用 (CCU) する技術の進展が求められる。

CCU の一つとしてメタネーションがある。



発見から 100 年以上が経過した古い反応であるが、CO₂ 削減に実効性のある規模での実証例はない。IEA の持続可能な開発シナリオ¹⁾に基づけば、2040 年には、再エネの全電源に占めるシェアが OECD 諸国で 63% (我が国の場合 56%) となることが示される。太陽光や風力のような出力不安定電源が大量に導入された場合、想定される余剰電力の大規模かつ長時間の蓄エネルギー技術の一つとしてもメタネーションが注目される。

著者の一人である町田らは、化学吸収法における吸収液開発の見地から、CO₂ 分離回収の省エネルギー化に取り組んできた^{2,3)}。その中で、CO₂ 吸収時に CO₂ 濃厚相と希薄相に液液相分離するアミン・エーテル混合水溶液が、CO₂ 吸収および再生の双方を促進し、分離回収に必要なエネルギーを大幅に削減できることを見出した。加えて、プロセス開発の見地からも省エネルギー化の更なる可能性を追求し、水素をストリッピングガスとして CO₂ 再生を促進、得られた CO₂ と水素の混合ガスをメタネーションやメタノール合成等の CO₂ 利用プロセスの直接原料とする「CO₂ 分離回収利用の統合プロセス」を提案した⁴⁾。現在、ラボプラン

トによる連続試験とエネルギー評価を含む、実用化に向けた諸技術の開発を進めている。

以下では、我々が取り組んでいる、メタネーションプロセススケールアップに向けた反応工学的研究と CO₂ 分離回収と利用のプロセス統合による所要エネルギーの大幅削減に関する研究について紹介する。

2. メタネーション

2.1 反応速度モデルの構築

Sabatier 反応として知られているメタネーションは、工業的に広く使われているニッケル (Ni) 系触媒上で 95% 以上の転換率と、ほぼ選択的にメタンを合成できることが報告されており⁵⁻⁷⁾、再生可能エネルギーを用いた水の電気分解による水素を原料にするとカーボンニュートラルなメタン製造が可能である。Power-to-gas (PtG) と呼ばれるこの技術から合成されるメタンは、既存の天然ガスインフラを変更せずに利用できる利点があり、再生可能エネルギーが主要電源になる状況^{1,8)}において、安定的なエネルギー供給および貯蔵に寄与すると期待されている。

高活性・高耐熱性のメタネーション触媒は既に開発されているが、比較的簡単である総括反応にもかかわらず触媒種類によって異なる触媒表面上詳細反応メカニズムが提案されており^{9,10)}、このことは、反応器スケールアップに必須となる反応速度モデルの構築を困難なものとする。加えて、原料ガスが完全に転換するまでに想定されるガス組成範囲で、モデルの適用性を検証した研究例はない。そこで、メタネーション反応器を設計する上で、実用的な反応速度モデルの構築とパラメーター決定を目的とし、高圧ガス流通系触媒固定床反応器を用いた反応速度測定および解析を実施した。

イットリア安定化ジルコニアを担体とするニッケル触媒を対象に実機で想定される条件、すなわち、温度 200~700℃、圧力 0.8 MPa、原料ガス組成 CO₂: H₂ = 1: 4 (モル比) で、原料ガスが、完全にメタンと水に転換していく過程で想定されるガス組成を供給ガスとして、100 近くの条件で反応速度の測定を実施した。

測定したメタン生成速度 (r_{CH_4}) を基に、以下に示すように物質 i の分圧 (p_i) で表現されるラングミュア・ヒンシェルウッド型の反応速度式¹¹⁾の速度パラメーターを決定するためのフィッティングを行った。

$$r_{CH_4} = k_f \frac{K_{CO_2} p_{CO_2} p_{H_2}^{0.5}}{(1 + K_{CO_2} p_{CO_2})^2} - k_r \frac{K_{H_2O} p_{CH_4}^2 p_{H_2O}}{(1 + K_{H_2O} p_{H_2O})^2}$$

ここで、 k_j は反応 j (f : 正反応、 r : 逆反応) の速度定数、 K_i は物質 i の吸着平衡定数である。これらのパラメーターは温度の関数であるが、等温で得られた反応速度に対して定数として考慮できる。回帰分析法の一つである非線形最小二乗法を用いて6つの速度パラメーターを決定した。温度ごとに導出した定数のアレニウスプロット上線形関係により活性化エネルギーと吸着エンタルピーを求められる。測定したメタン生成速度と導出したパラメーターを用いて計算した値のバリティプロットを図1に示す。100 近くの実測データを精度よく再現でき、原料ガスがメタンと水に転換する過程で想定されるガス組成の全範囲において適用可能なモデルを構築できた。

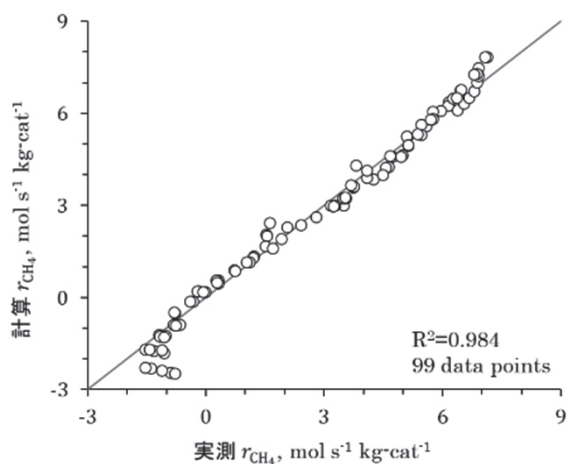


図1 メタン生成速度の実測値と計算値の比較

2.2 伝熱・流動・反応を考慮した熱流体シミュレーション

数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics、CFD) は、基礎研究分野だけではなく、産業界にも広く応用されている。CFD の最大の有用性は、実験で計測することがきわめて困難な三次元空間場における時系列データが得られる点や、境界条件や初期条件を自由に設定することができるため、流れ現象の理解、予測、制御等につながる有用なデータが得られる点である。ここでは、前節で開発したメタネーション反応速度モデルを利用し、メタネーション反応器を対象に、化学反応、流動、伝熱を考慮した数値シミュレーション手法の開発について述べる。

我々は、オープンソースのCFDツールであるOpenFOAMをベースに、気・固・液の伝熱連携解析

が可能である独自のソルバーを開発した¹²⁾。このソルバーは、ガス→反応器管、反応器管→冷却媒体、またはガス→触媒の多相伝熱、かつメタネーション反応を考慮することが可能である。

単管シェルアンドチューブ型反応器で実施されたメタネーション試験を解析対象とし、三次元熱流体シミュレーションを行った。図2に計算対象の模式図を示す。この反応器は反応管内径28 mm、全長およそ2000 mm、中心部に触媒が充填されており、触媒層長さはおよそ1500 mmである。触媒層の温度分布計測を行うため、反応管内部に熱電対を挿入できる鞘管が設置されている。反応による触媒層からの熱回収を目的として、反応管外周に熱媒体を循環させるためのジャケット管を設けている。反応熱を吸収した熱媒体は、循環ラインに設けた熱交換器により回収熱を除去する。ジャケット外周は断熱材で被覆する。これらの情報に基づき計算格子を作成した。気相領域だけではなく、反応管である固相と熱媒体が流通する液相も解像し格子を作成した。気相と反応管領域、反応管領域と熱媒体領域との境界面は温度をカップリングしている。

計算において、気相に対し質量保存式、運動量保存式、エネルギー保存式、化学種保存式の4式、固相に対し温度伝導式、熱媒体相に対し質量保存式、運動量保存式、エネルギー保存式の3式を解く。更に、本ソルバーは触媒層温度分布を気相温度と分離して考慮する二温度モデル¹³⁾を用いるため、気相に触媒層温度方程式も追加して解く。触媒層の存在による気相圧力損失はDarcy-Forchheimer則により評価し、気相運動量方程式にソース項として追加した。計算条件としてガス入り口流量は3 Nm³/hであり、熱媒体流量は2.5 Nm³/hである。ガス入口温度は実験中触媒層入り口の計測値に合わせ、200℃とする。熱媒体温度と圧力は、それぞれ、試験条件と同じ200℃と0.6 MPaである。ガスの物性値は混合物各成分の物性値から算出され、熱媒体の物性は実際に用いた熱媒油の物性値を使用した。メタネーション反応速度は前節で開発した速度モデルで評価する。

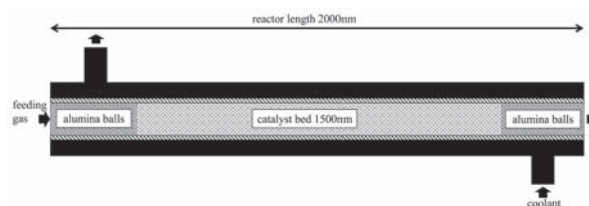


図2 計算対象の模式図

図3に中心軸上における温度の計算値と実験値を示す。実線は気相温度、破線は触媒層温度である。図から、シミュレーションで得られた温度プロファイルは実験結果と良い一致を示す。触媒層入口から下流にかけて、メタネーション反応の進行に伴う発熱により、触媒層及びガス温度双方の温度が上昇する。その後極大を経て、反応がほぼ完了し、クーラントによる熱除去速度が、反応による熱発生速度を上回るため、温度が低下していく様子を再現できた。反応器出口におけるCO₂転化率も、実験結果にほぼ一致した。気相-触媒層が放出した熱と熱媒体が回収した熱の差の収支の誤差も0.2%程度であった。したがって、本研究で開発したシミュレーション手法は、正しく反応器内部の現象を机上再現できることから、メタネーション反応器のスケールアップ、または実用化に向けて有力なツールになると期待できる。現在、NEDO CO₂有効利用技術開発で進められている、メタン製造規模8 Nm³/hのパイロットプラントにおける反応器を解析対象とする大規模計算を実施している。

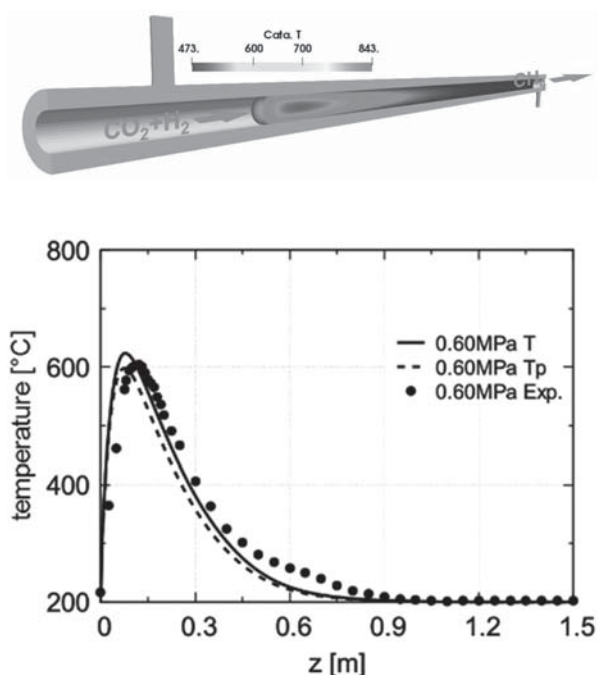


図3 独自開発ソルバーを用いたメタネーション単管シェルアンドチューブ型反応器シミュレーション結果(上図)と触媒充填層中心軸上における温度分布(0.6 MPa、CO₂: H₂ = 1 : 4 (モル)、GHSV = 3248 h⁻¹)の実測値(プロット)と計算値(実線と破線)の比較

3. CO₂分離・回収・利用統合プロセス

3.1 概念

CO₂分離回収のエネルギー削減は材料、プロセス両面の改善が必要である。これまではCCSを想定し、

燃焼排ガスより純CO₂を回収するプロセスが検討されてきた。一方、CO₂を有効利用するケースにおいては必ずしも純CO₂が最終的に必要ではないケースもある。今回はメタネーションなどCO₂を還元利用することを想定した際のプロセス統合による省エネ化検討⁴⁾に関して説明する。

CO₂還元反応としてCO₂メタネーションを想定した場合、原料ガスは化学量論的にはH₂/CO₂比4が望ましい。提案する概念は燃焼排ガスから純CO₂回収後H₂を混合するのではなく、再生塔に供給することでCO₂脱離を促進させ、省エネ化を図ることにある。図4に提案するH₂ストリッピングプロセスを示す。

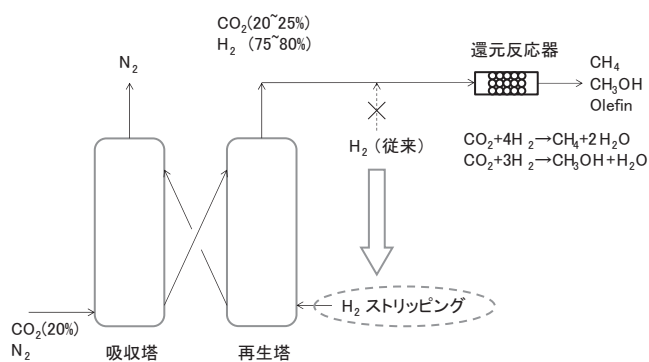


図4 提案するH₂ストリッピング技術

3.2 H₂ストリッピングによる再生塔温度低減効果

汎用的なアミンであるMEA(モノエタノールアミン)をモデルとしてH₂ガスストリッピングの効果を検証した。プロセスシミュレータASPEN Plusを使用し、再生塔のモデルとしては平衡段モデルを採用した。ASPEN PlusにはMEAへのCO₂吸収プロセス設計に必要な物性推算モデルが備わっている。塔内圧力は常圧1 atmとし、塔の圧力損失は0とした。

図5に塔内における気相中のCO₂分圧を示す。H₂ストリッピングがなしのケースでの塔内組成はCO₂以外ほぼ水蒸気により満たされており、塔頂ではH₂O/CO₂が1程度となっている。一方、H₂ストリッピングでは、H₂の存在により相対的にCO₂分圧が下がっていることが分かる。気相CO₂分圧の低下は液相CO₂濃度の低下につながり、再生促進、再生塔温度低減に貢献する。

図6にストリッピングの有無による塔底温度の関係を示す。ストリッピング無しのケースでは塔底温度は100℃程度を示す。これは溶液の沸点圧力と同程度である。一方、ストリッピングガスを供給すると再生塔温度は減少する。H₂/CO₂比が増加すると再生塔温度

は低下する傾向を示し、メタネーションで想定される H_2/CO_2 比 4 程度では約 85℃ となる。ストリッピング再生技術は、省エネルギー化が進む最新の吸収剤に対してもさらに効果を発揮する。当研究室で開発を進めている相分離型吸収剤²⁾はもともと低温 90℃ での再生を特徴としていた。これはアミンの極性が CO_2 と結合前後で変化する現象を利用している。本相分離型吸収剤に H_2 ストリッピングを適用すると H_2/CO_2 比 4 程度では約 60℃ となる（図 6）。現在、ラボスケールの吸収再生塔が研究室にあり、吸収塔 50℃、再生塔 60℃ で連続運転が可能であることが分かっている。

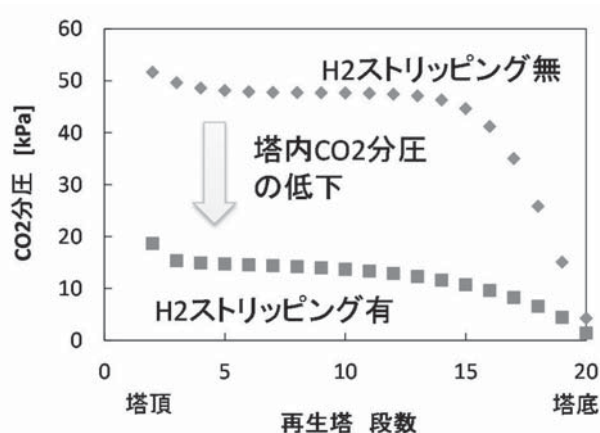


図5 H_2 ストリッピングの有無による塔内 CO_2 分圧比較 (MEA のケース)

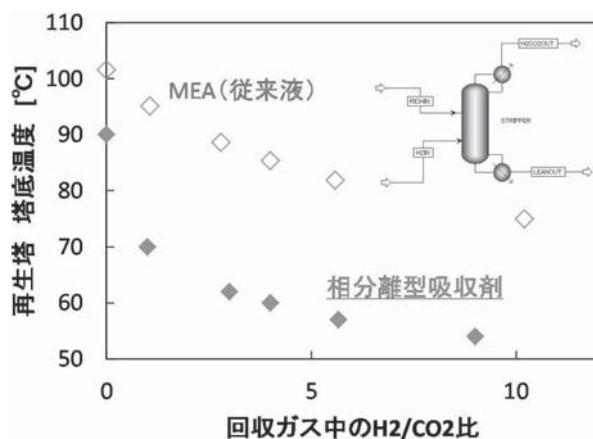


図6 回収 H_2/CO_2 比と再生塔塔底温度の低減効果

3.3 所要エネルギー

CO_2 分離回収に必要なエネルギーは主には再生塔のリボイラー部に必要なエネルギーであり、 CO_2 とアミンの解離エネルギー、液の昇温エネルギー、水の蒸発熱などで構成される。汎用的な MEA では 3.5～4 GJ/ton- CO_2 と報告されている。

水素ストリッピング技術では再生塔温度の低減が可

能であることが分かったが、一方、主要な CO_2 とアミンの解離エネルギーは等しくかかる。解離エネルギーの削減手段の一つとしてヒートポンプの利用が考えられる。これは、吸収塔での反応熱をくみ上げ再生塔における解離熱に利用することを示す。 H_2 ストリッピング技術によって、吸収塔と再生塔の温度差を、従来よりも小さくできるので、ヒートポンプによる反応熱回収の効率が改善する。図 7 には基準の MEA と H_2 ストリッピング技術、ヒートポンプを組み合わせた際の CO_2 回収エネルギーを示す。相分離型吸収剤は吸収塔－再生塔温度差が 10℃ と小さく、1 GJ/ton- CO_2 以下での CO_2 分離が可能であることが示された。なお、本計算は常圧での操作が前提である。 CO_2 還元反応の操作圧力次第では昇圧のエネルギーなどを追加しなければならず、条件に対応した最適化が必要である。

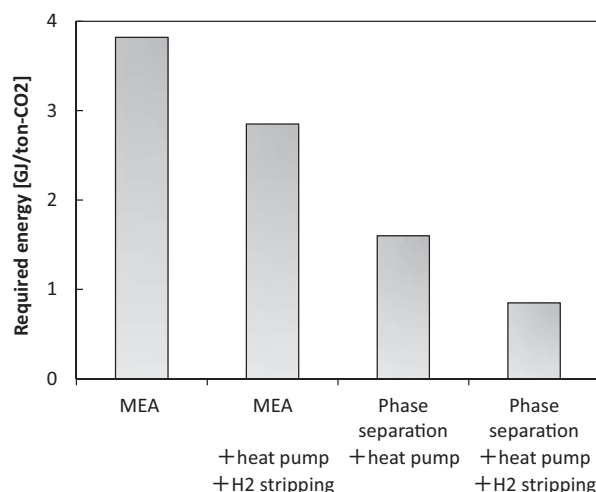


図7 CO_2 回収エネルギー比較

4. 結言

メタネーションプロセスのスケールアップの加速を目的とした反応器流動・伝熱・反応数値シミュレーションと化学吸収法に基づく CO_2 分離回収プロセスにおける再生塔に、水素をストリッピングガスとして供給して、CCU 原料を直接出力する新プロセスに関する取り組みについて紹介した。

CO_2 利用のための大量の水素をいかに確保するかが課題であると認識している。このときの水素は、欧州における CertifHy プロジェクト¹⁴⁾が認証する、いわゆるプレミアム水素（天然ガス改質による水素製造時の CO_2 排出量より 60% 以上低い水素）のようなものが想定される。余剰電力、プレミアム水素、 CO_2 の発生箇所や規模の制約下、建設プラントの規模と立地の

検討を含む総合的な設計が重要である。

なお、メタネーションに関する研究は、NEDO「次世代火力発電基盤技術開発／CO₂有効利用技術開発」（国際石油開発帝石株式会社、日立造船株式会社、産業技術総合研究所、名古屋大学）において実施した。省エネルギー CO₂分離回収は、JST 先端的低炭素化技術開発 ALCA（JPMJAL 1511）の支援、株式会社神戸製鋼所との共同研究のもと実施した。実験、解析、計算の大部分は研究室学生諸氏が実施した。

【参考文献】

- 1) IEA, World Energy Outlook 2017.
- 2) H. Machida, R. Ando, T. Esaki, T. Yamaguchi, H. Horizoe, A. Kishimoto, K. Akiyama, M. Nishimura, *Int. J. Greenhouse Gas Control*, **75**, 1 (2018).
- 3) K.V.B. Tran, R. Ando, T. Yamaguchi, H. Machida, K. Norinaga, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **59**, 3475-3484 (2020).
- 4) H. Machida, T. Esaki, T. Yamaguchi, K. Norinaga, *ACS Sustain. Chem. Eng.*, **8**, 8732-8740 (2020).
- 5) S. Tada, T. Shimizu, H. Kameyama, T. Haneda, R. Kikuchi. *Int. J. Hydrog. Energy* **37**, 5527-5531 (2012).
- 6) M.A.A. Aziz, A.A. Jalil, S. Triwahyono, A. Ahmad. *Green Chem.* **17**, 2647-2663 (2015).
- 7) A. Jangam, S. Das, N. Dewangan, P. Hongmanorom, W.M. Hui, S. Kawi. *Catal. Today*, (2019). Accepted. doi: 10.1016/j.cattod.2019.08.049
- 8) U.S. EIA, International Energy Outlook 2019. Available at: <https://www.eia.gov/outlooks/ieo/>
- 9) B. Miao, S.S.K. Ma, X. Wang, H. Su, S.H. Chan. *Catal. Sci. Technol.* **6**, 4048-4058 (2016).
- 10) I. Sreedhar, Y. Varun, S.A. Singh, A. Venugopal, B. M. Reddy. *Catal. Sci. Technol.* **9**, 4478-4504 (2019).
- 11) 高野裕之、二酸化炭素のメタン転換用 Ni/ZrO₂ 触媒の開発研究、博士学位論文、北海道大学、(2016). doi : 10.14943/doctoral.k12339.
- 12) W. Zhang, H. Machida, H. Takano, K. Izumiya, and K. Norinaga, *Chem. Eng. Sci.* **211**, 115276 (2020).
- 13) C. Hsu, *J. Heat Trans.* **121**, 733-739 (2003).
- 14) CertifHy, (2019) Available at: www.certifhy.eu/



則永 行庸

名古屋大学大学院工学研究科

1999年3月 博士（工学）北海道大学、その後、東北大学助手、カールスルーエ工科大学（KIT）研究員、北海道大学准教授、九州大学准教授を経て、2017年より名古屋大学大学院工学研究科化学システム工学専攻教授。2018年より同大未来社会創造機構マテリアルイノベーション研究所所長。

有人宇宙ミッションに向けた閉鎖空間における環境制御・生命維持システム技術開発

Development of Environment Control and Life Support System for manned space mission

宇宙航空研究開発機構 有人宇宙技術センター
Japan Aerospace eXploration Agency
Human Spaceflight Technology Center

坂井 洋子、中野屋 壮吾
Yoko Sakai, Sogo Nakanoya

1. はじめに

1961年のガガーリンによる有人宇宙飛行を皮切りとして有人宇宙活動は発展を続け、1998年以降は、高度400kmの地球低軌道を周回する国際宇宙ステーション（ISS）が建設され始め、人類が常に宇宙に滞在してきた。近年ではSpaceXのような民間宇宙企業が手掛ける宇宙船も実用化されつつあり、地球低軌道プラットフォームは民間の時代へ、そして各国宇宙機関はさらに遠くの月や火星等の有人探査を見据えた研究開発を開始している。

有人宇宙船や宇宙ステーションは閉鎖空間であるため、宇宙飛行士が排出するCO₂や微量な有害ガスは除去しないと船内に蓄積され、人間が活動できなくなる。例えば、人は1日に約1kgのCO₂を排出するが、CO₂の除去装置がないと、ISSの居住空間（373m³、クルー6人）では、1日でCO₂濃度が8000ppmも増

加してしまう。汗や呼気に含まれる水分や、体から発する熱についても、放っておくと蓄積して、結露（電気機器をショートさせて火災の原因となる。酸素を奪われ、逃げ場もないので火災は宇宙では何としても避けなければならないイベントである）したり、人間や機械の耐熱温度を越えてしまったりするので、除去する必要がある。また、当然のことながら、水や酸素の供給や、酸素消費に伴うキャビンの全圧や酸素分圧の制御も生命維持に必須である。

こうした、人が宇宙で生活するために必要なシステムを総合して、「環境制御・生命維持システム（ECLSS：Environment Control and Life Support System）」と呼んでいる。

ECLSSは以下のようなサブシステムで構成されている。

- ・全圧・酸素分圧制御システム
- ・温湿度制御システム
- ・CO₂除去システム
- ・微量有害ガス除去システム

人の宇宙での滞在が長くなると、地球からの水や酸素を定期的に地球から補給する必要がある。地球からISSへの輸送コストはおおよそ400万円/kgと言われており、月、火星や他の惑星等、より遠く、より長いミッションになると、莫大な輸送コストがかかることになる。そこで、除去したCO₂や水分、尿等から水や酸素をリサイクルするシステムが、各宇宙機関、宇宙メーカーにより、研究・開発されており、以下の

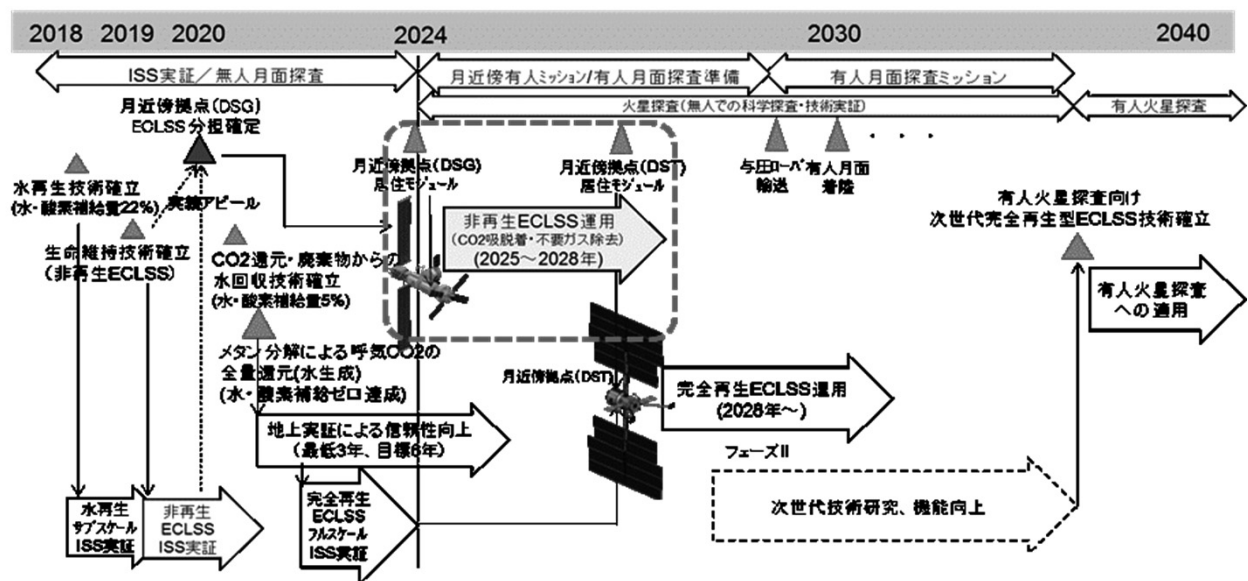
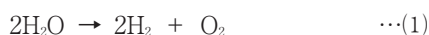


図1 JAXAの将来探査計画とECLSS技術開発ロードマップ

システムがすでに ISS にて稼働している。

- ・ CO₂ 還元システム
- ・ 酸素製造システム
- ・ 水再生システム

現在 ISS で稼働している上記システムの仕組みは、次のようなものである。宇宙飛行士の尿や、凝縮水(汗や呼気に含まれる水分を凝縮して回収した水) から、蒸留と触媒酸化により水を浄化し(水再生システム)、浄化された水の電気分解によって、酸素を発生させる(酸素製造システム：式(1))。電気分解で得られた水素を用いて、CO₂ 除去システムで除去した CO₂ を還元し、また水を得る(CO₂ 還元システム：式(2))。ヒトの呼吸商によれば、酸素 1 mol を消費する間に二酸化炭素およそ 0.92 mol¹ が排出されるため、酸素 1 mol を生成する際に得られる水素では、すべての CO₂ を還元することはできない。現状のシステムでは、必要な酸素の最大 50% を CO₂ からリサイクルできる(実際には各反応の反応効率により、これより低い効率となる)。



日本の ECLSS 技術に目を向けてみると、宇宙航空研究開発機構(JAXA)は、ISS では実験モジュール「きぼう(JEM: Japan Experiential Module)」を開発し、現在も運用しているが、JEM に搭載されてい

る ECLSS は温湿度制御器等の一部の機器に限られる。モジュール間によく換気されているため、CO₂ や微量有害ガスの除去、酸素や水の生成は NASA やロシアが開発したモジュールに搭載される装置だけで十分だったという背景がある。

一方で、近年、月周回軌道に構築する新たな宇宙ステーション Gateway や、月面ローバー、ISS の運用延長等が国際的に議論されており、有人宇宙活動はますます発展していこうとしている。そのような中で、JEM で培った日本のプレゼンスを維持し発展させるためには、有人宇宙の基幹技術である ECLSS 技術の獲得が必須だと考えられる。そこで、JAXA では、より再生率の高く、小型・省電力なシステムの構築を目指して再生型 ECLSS 技術の研究開発に取り組んできた。Gateway においては国際居住モジュールに、ECLSS 技術を提供することにもなっており(図1)、今回は、先述した ECLSS の各サブシステムについて、JAXA の開発状況を述べる。

2. 空気再生システム

水や酸素の補給量を低減するために JAXA が提案している ECLSS のコンセプトを図2示す^{2,3}。基本的な思想は現行の ISS と同じだが、水や酸素の補給量をより減らすために、CO₂ 還元後に得られるメタンを分解してさらに水素を得ることで、CO₂ の再生率を上げ

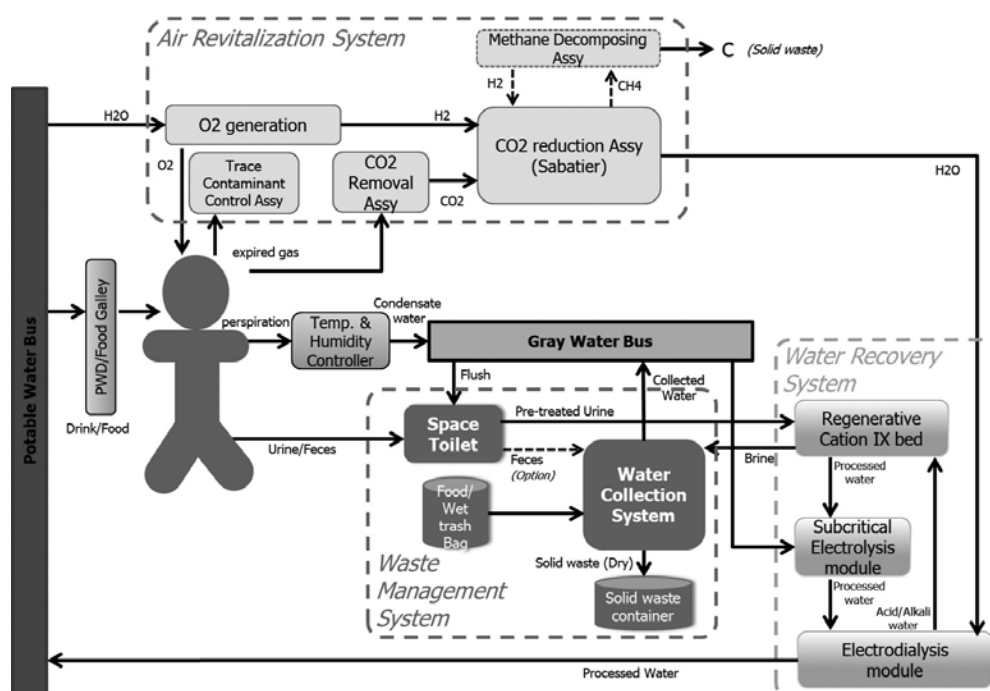


図2 完全再生型 ECLSS コンセプト

る。また、濡れたゴミ等からも水を回収し、水の再生率を上げる。本項では、図2に示すうち空気再生システム（Air revitalization System）について述べる。

2.1 CO₂ 除去システム

地上では、大気中のCO₂濃度は400 ppm程度、室内でもせいぜい1,000 ppm程度である。一方、ISSではCO₂除去システムにより室内CO₂濃度がおよそ4,000～5,000 ppmに維持されている。宇宙飛行士の注意力低下等も報告されており、将来的にはより低いCO₂濃度を維持することが求められるが、そのためには低CO₂濃度下で十分CO₂を吸着できる吸着剤が必要となり、またキャビンCO₂濃度が低くなるほど、システムに取り込まなければならぬ風量が増えてシステムのサイズや重量、消費電力が増大してしまうため、宇宙船の限られたリソースの中でキャビンのCO₂濃度を地上レベルに維持することはかなり難しいものがある。そこで、国際調整により、表1に示す濃度（分圧）とCO₂除去量を目標として、各国の技術開発が進められている。

CO₂除去技術は、宇宙特有のものではなく、地上でも様々な手法が研究・実用化されている。それらに対して行った、図1に示す将来探査計画での実用化を目指した宇宙船内でのCO₂除去技術としてのトレードオフを表2に示す。宇宙での実用化においてポイントとなる項目としては、重量や電力の他に、微小重力環境で使用できるか、毒性がないか、などがあげられる。また、このECLSSは宇宙飛行士の生命に関わるシステムであり、信頼度が重視されるため、「枯れた」技

術であることは加算要素となる。その観点から地上での実用実績もトレードオフ項目に含めている。これらの要素を踏まえて、Gatewayへの搭載システムとしては、吸着剤を使ったCO₂除去システムを選定し、開発に注力している。

一方で、より長い目で見れば、表2に示す技術の中にも、吸着剤を用いたシステムよりも小型で省電力なシステムを仕上げられる可能性がある技術もある。そのため、JAXAでは、生物の光合成を利用したCO₂処理兼酸素製造や、CO₂分離膜によるCO₂濃縮、CO₂吸収イオン液体と中空糸膜を用いたCO₂吸脱着などの要素検討を行っている。

表1 CO₂回収装置の目標仕様

項目	目標仕様
制御目標CO ₂ 分圧	2 mmHg～3 mmHg
CO ₂ 除去量	4.7 kg/day
回収CO ₂ 純度	95% 以上
消費電力	1 kW
サイズ	0.45 m ³

CO₂吸着剤に関しては、最近こそDACが注目されるようになってきたものの、それまでは、2,000～4,000 ppmのような低濃度で吸着量の多い吸着剤は市場にあまりなく、地球環境産業技術研究機構（RITE）とともに低濃度対応の吸着剤の開発を行ってきた。一般的にはCO₂吸着剤として、ゼオライトが用いられることが多く、実際ISSにて稼働中のCO₂除去システムもゼオライト5Aを使ったシステムである。しかし、ゼオライトは水蒸気の吸着がCO₂の吸着を阻害

表2 方式トレードオフ

評価項目	吸着剤	膜	深冷	吸収液	人工光合成	電気分解
概要	吸着剤でCO ₂ を吸脱着	分離膜で空気からCO ₂ を分離	液化点の差で、CO ₂ と空気を分離	吸収液でCO ₂ を吸脱着	触媒と電気等でCO ₂ と水をエチレン等に分解	溶融塩中でCO ₂ →C+O ₂
地上での実用実績	○豊富	×ベンチテストレベル	○豊富	○豊富	×なし	×なし
システム電力	△中程度	△中程度	×大	△中程度	不明	×不明だが800℃等必要
システム重量	△中程度	△中程度	×大	△中	不明	不明
安全性（毒性）	○ほぼなし	◎なし	◎なし	△～×	○ほぼなし	不明
微小重力影響	○ほぼなし	○ほぼなし	△気液分離が課題	△液体の保持やガスと液の接触方法等が課題	△気液分離が課題	△液体の保持やガスと液の接触方法等が課題
その他		低濃度対応・真空スweepはまだTRLが低い			副生成物発生、まだ効率低い	除湿必要 CO発生 まだ効率低い
総合評価	○	△将来的	×	△将来的	×将来的	×将来的

するため、湿気を含むキャビンエアから CO_2 を除去するためには、除湿が必要となる。除湿機能を追加することはサイズや重量、消費電力の増加につながり、ゼオライト吸着剤を採用しても現行システムを凌駕することが難しい。そこで、図3に示すような除湿筒を必要としないPTSA (Pressure and temperature swing adsorption) システムの構築を目指してアミン系の剤の開発に取り組んできた。 CO_2 還元システムにて CO_2 を利用するためには、表1に示す通り脱着する CO_2 の純度を上げる必要がある。そこで、脱着時に装置内に残っていた空気を真空ポンプにより 1 kPa 程度以下まで排気してキャビンに戻してから脱着した CO_2 を純度よく回収する。このため圧力スイングと温度スイングを組み合わせたシステムとなる。

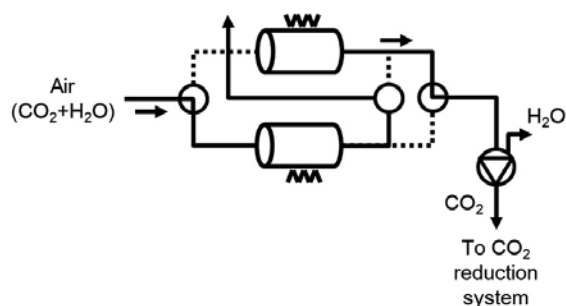


図3 CO_2 除去システム概念図

宇宙用システムに搭載する CO_2 吸着剤に求められる要素には低 CO_2 濃度域での吸着量が大きく、再生温度が低い（すなわち小型で省電力）こと以外に次のようなものがある。

- (1) オフガス／アウトガスを排出しないこと。宇宙飛行士への健康被害を防ぐためにもシステムからの発生ガス量は厳しく制限されており、有機物が発生すると後述する微量有害ガス除去システムの負荷となる。
- (2) 寿命が十分長いこと。先述の通り、地球からの輸送には莫大なコストがかかるため、部品の交換頻度は少なければ少ないほど良い。現在ターゲットとしている設計寿命は 15 年である。
- (3) なるべく粉化しないこと。ISS に搭載されている現行システムでは、粉化した吸着剤によるバルブのスタックでシステムの不具合が多発している。微小重力下では液体の保持も難しいが、固体であっても吸着剤のような小さな粒子を動かないように保持することは難しく（流動化速度がほとんどゼロと考えられる）、運用を続け

るほど剤が動き摩耗していく。なるべく剤が動かないような工夫も必要だが、より硬く摩耗に強い剤を開発することも重要となる。

これらの要素を意識し開発した吸着剤を用いて、吸着剤約 7 L スケールの試作機の製作を行い、システム性能の検討を行った。アミンを担体に含浸させるタイプの吸着剤を用いて試験を行ったところ、脱着用の真空ポンプにて凝縮した水に有機物が含まれていることが確認され、真空ポンプ内に、その有機物由来と思われる付着物が確認された。飽和水蒸気圧を考えると、吸着筒内でも一部凝縮が起っていた可能性もあり、アミン由来の成分が脱離した水に溶けてしまったことが考えられ、ポンプ（や吸着剤）の寿命に悪影響を与える結果となった。

そこで、アミンを担体に化学結合させたグラフトタイプの吸着剤を開発して試験を行ったところサイクル運転により 3 人分弱の CO_2 の除去が安定的に確認できた。微小重力環境では脱離して凝縮された水が下方にたまるということがないため、脱離した CO_2 と水とを分離して水を回収するのに工夫が必要となる。そこで、すでに JEM にて稼働している回転式の水分離機と真空ポンプを組み合わせたポンプの開発も進めている。

また、吸着容量としては含浸タイプの吸着剤の方が優位であるため、含浸タイプの吸着剤については前段に除湿筒を搭載するシステムも並行して開発中である。

宇宙化に向けては、小型・省電力を徹底的に追求する必要がある。そこで、試作機のデータをもとにプロセスダイナミクスのシミュレーションや CFD と吸着モデルとを組み合わせたシミュレーションを開発し、解析と試験を併用しながら最適化を進めている。

2.2 酸素製造システム

酸素を製造する方法にもいくつかあるが、リソース制約と CO_2 還元による水生成のことを考えると水の電気分解が一番効率的である。水の電気分解方法には、電解液式、固体電解膜式、水蒸気電解式とあるが、電解液式は電解液が強アルカリであり安全性に課題があること、水蒸気電解式はまだ基礎開発段階であることから、図4に示すような固体電解膜式に注力し、開発を行っている。固体電解膜式の水分解は、すでに水素製造装置として地上技術としては確立されているが、無重力下での気液分離と、水素が閉鎖空間にリークしないようにするための安全性の確保は、宇宙特有の難

しがある。現在は、これらの課題の解決に取り組んでいる。

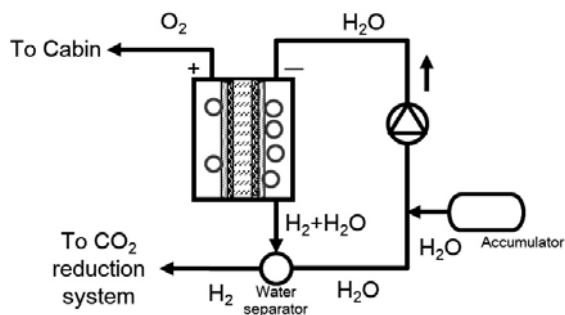


図4 酸素製造システム概念図

2.3 二酸化炭素還元システム

二酸化炭素還元システムでは、CO₂除去システムで回収したCO₂と酸素製造で得られた水素を混合し、触媒下でサバチエ反応（式(2)）を行い、水を生成する（図5）。JAXAでは、低温で高効率に反応を行える触媒を開発してきた⁴。近年では、カーボンニュートラルな燃料としてCO₂と水素からメタンを製造するメタネーション技術がCO₂利用として有望視されており、地上技術としても実証が進んでおり、民生メーカーと協力してシステムの開発も進めている。

宇宙化に向けて現在課題としているものは、微小重力下での気液分離機の他に、制御方法がある。この二酸化炭素還元システムでは、CO₂除去システムと酸素製造システムとメタン分解システムから原料を得て反応を行うため、これらのシステムの挙動、ひいては宇宙飛行士の代謝変動に影響され、単純に混合しただけでは量論比の反応を行えない。量論比の反応を行うためには、CO₂や、場合によってはH₂やO₂のバッファタンクを持ち流量制御を行う必要があるが、搭載容積等の制約がある中で、バッファタンクはなるべく持たないことが望ましい。

そこで、空気再生の統合プロセスモデルを製作し、

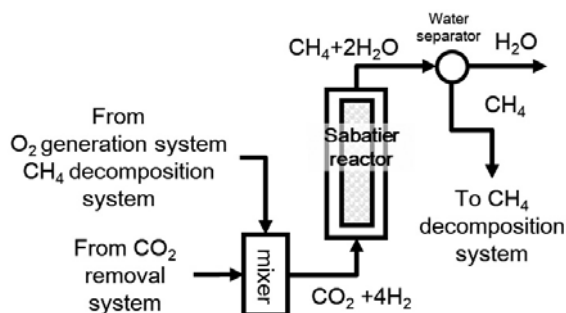


図5 CO₂還元システム概念図

宇宙飛行士の代謝を考慮したマスバランスをシミュレーションし、統合制御方法の検討を進めている。

2.4 メタン分解システム

先述した通り現行のISSでは、宇宙飛行士に必要な酸素1 molを生成する際に得られる水素では、すべてのCO₂を還元することはできないため、再生率を上げるためには、二酸化炭素還元システムの生成物であるメタンからさらに水素を得る必要がある。メタンから水素を得るためには、メタンをアセチレン、エチレン、炭素へと変換する選択肢がある。JAXAでは、より再生率の上げるために、触媒下でマイクロ波を照射することにより式(3)に示す反応を行う技術⁵に着目し、システム化するために、要素試験を進めている^{2,3}



先述のヒトの呼吸商を考慮すると、宇宙飛行士が排出したCO₂から生命維持に必要なO₂の最大92%をリサイクルでき（実際には各反応の反応効率により、これより低い効率となる）ることになる。

2.5 微量有害ガス除去システム

微量有害ガス除去システムは、空気のリサイクルには関与してこないが、人が排出するアンモニア等の微量な有害ガスや船内装置からのオフガスを、活性炭などの吸着剤で吸着したり、触媒下で燃焼させてCO₂や水にしたりすることで除去する。ISSやそれ以前の宇宙ステーションや宇宙船のキャビンエアを分析したデータによれば、キャビンエアには、何百種類もの微量な有機ガスが含まれている。人が暴露されてもよい微量な有害ガスの濃度上限値がNASAにより定められており、これらのガスをすべてある濃度以下になるまで除去する必要がある。すべての微量有害ガスを考慮して設計し、検証を行うことは途方もないが、NASAによるデータの蓄積と分析により現在では、代表して、エタノールやアンモニア、シロキサン等の17種類のガスを目標濃度以下まで除去できれば、ほかの微量有害ガスも除去できることが報告されており⁶、絞られたガスをターゲットに設計を進められている。それでも、ターゲットとなるガスは多く、複数ガスの共存による吸着の追い出し効果をどのように考慮するか、どのような吸着剤・触媒の組み合わせにするか等、検討はかなり複雑となっている。

多成分に対して吸着容量の大小を判断する1つの手法として、Polanyi Plotsを作成する手法⁷が提案され

ている。これは物理吸着されるガスに対してのみ有効とされる方法だが、閉鎖系で吸着剤にガスを通じた際の平衡吸着量 q を計測する。式(4)で定義される Adsorption potential A は被吸着ガスの試験条件と物性から算出され、 q との間に式(5)に示す関係がある。横軸 A 、縦軸 $\log q$ としてプロットを行ったものを Polanyi Plots と呼び、ガス種によらず、プロットが上にあるほど Adsorption potential A のガスに対して吸着容量が大きいという評価が可能になる。図6に JAXA にて過去に開発した活性炭と市販の活性炭について、Polanyi Plots を作成したグラフを示す。Adsorption potential A が大きいガスについては吸着能力が高いことが推測される。

$$A = (T / V_m) \log_{10} (P_s / P) \quad \cdots(4)$$

(T : 吸着剤温度、 V_m : 沸点におけるガスのモル体積、 P_s : 温度 T における吸着ガスの蒸気圧、 P : 吸着ガスの初期分圧、 α 、 β : 定数)

$$q = \alpha e^{(-\beta A)} \quad \cdots(5)$$

実際、微量有害ガス除去システムを設計する際には、設計の律速となるガスについては特に破過曲線の取得が必要となるが、候補吸着剤のスクリーニングや、設計に支配的でないガスの確認等には、こういった手法を用いることにより、試験を簡略化する工夫をしている。

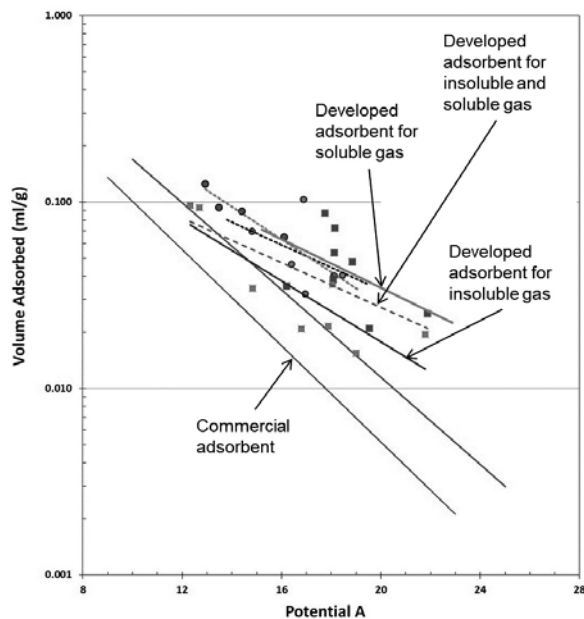


図6 JAXA 開発活性炭と市販活性炭の Polanyi Plots 近似曲線

3. 水再生システム

水再生システム(Water recovery system)では、図

2 に示す通り尿や凝縮水から、カルシウムイオンやマグネシウムイオンなどのカチオンを除去し、有機物を高温高压化で電気分解し、残留した無機イオンを電気透析により除去することで浄化する技術を用いてシステム開発を行っている⁸。現行システムと比較して小型で消耗品が必要ない点が有利なシステムであり、現在 ISS にて実証試験を行っている。

4. 廃棄物からの水回収システム

図2に示す廃棄物マネジメントシステム(Waste management system)の主要サブシステムである廃棄物からの水回収システムは、宇宙船内で発生する濡れたゴミや便からも水を回収するシステムである。より回収水分率を上げるために、地上技術として確立されている凍結乾燥(フリーズドライ)に着目し、民生メーカーと開発を進めてきた⁸。宇宙化にあたっては、回収した水の気液分離や、被乾燥物から発生する揮発物の処理が課題となり、引き続き広く技術を探求していきたいと考えている。

5. その他の ECLSS サブシステム

本項では、これまでに触れていない全圧・分圧制御システムと温湿度制御システムについて触れる。

宇宙飛行士の酸素消費や、宇宙船の構体からのリーク等、キャビンの圧力と酸素分圧は時間とともに低下する。そこで、全圧・分圧制御システムでは、定期的に酸素や窒素を供給することでキャビンの全圧や酸素分圧を維持している。

また、微小重力下では、気体の対流が起こらないため、宇宙飛行士が排出した CO_2 が口の周りに滞留し、窒息を引き起こす。また、人や機器から排出される熱も留まってしまう。そのため、キャビン内の空気をよく循環させる必要がある。温湿度制御システムでは、ファンにより、キャビン内の風速分布をある一定以上に維持している。同時に、ファンにより吸い込んだキャビンエアを、熱交換器を介して冷却水で冷やし、含まれている湿分を凝縮させることで排熱と除湿を行っている。キャビン内の風速分布を一定以上に保つのに必要な風量や吹出口/吸入口の配置を設計するためには、CFD 解析を用いている(図7)。ISS や Gateway のような、複数のモジュールから構成される宇宙ステーションでは、モジュール間を換気するための専用のファンもある。 CO_2 除去システムのような空気再生システムは全てのモジュールに搭載される必要はなく、

このモジュール間換気とモジュール内換気によってステーション全体の空気成分が均一化されていれば、どこか1つのモジュールに搭載されていればよい。ただし、実際には宇宙飛行士の運動による急激な排出CO₂量の変動等があった時の、システムの過渡的な応答も評価する必要があり、これまで述べてきた各ECLSSサブシステムを連携して評価することが必要である。

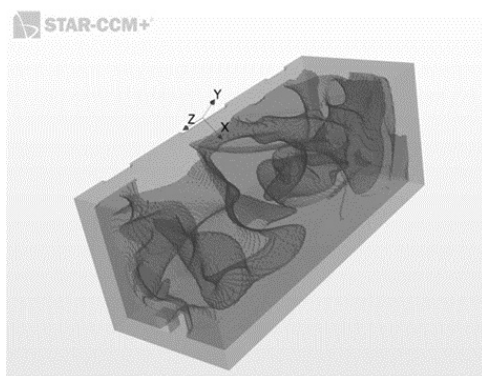


図7 キャビン内風速分布のCFD解析例

6. まとめ

JAXAは有人宇宙開発の基幹技術であるECLSS技術を獲得し、将来有人宇宙探査にて実用化するために、要素技術やシステム開発を進めている。2024年に運用開始となるGatewayプログラムでは居住モジュールへのCO₂除去システム、微量有害ガス除去システム、全圧・分圧制御システム、温湿度制御システムといった非再生ECLSSの提供が求められている。さらに将来的には水や酸素の補給量削減への貢献のために再生ECLSSの搭載をねらっている。これらで獲得した技術をさらにその先の月面探査や火星探査等にて生かせるよう、今後も要素技術の研究とシステムの開発に取り組んでいく。

[参考文献]

- 1) NASA/TP 2015218570/rev 1, Life Support Baseline Values and Assumptions Document (2018)
- 2) 坂井洋子, 立原悟, 岡利春, 早稲田真平, 桜井誠人, 島明日香, 中野屋壮吾, 第62回宇宙科学技術連合講演会講演集, 2H02, JSASS-2018-4494 (2018)
- 3) Y. Sakai, T. Oka, S. Waseda, T. Arai, T. Suehiro 1 and T. Ito, *48th International Conference on Environmental Systems*, ICES-2018-146 (2018)
- 4) .Shima, A., Sakurai, M., Yoshihara, S., Sone , Y ., Ohnishi, M. and Abe , T., *42nd International Conference on Environmental Systems*, AIAA-2012-3552 (2012)
- 5) 宮越昭彦, ケミカルエンジニアリング. 2014. 8. 24-34
- 6) J. L. Perry, *SAE 39th International Conference on Environmental Systems*, 2009-01-2592 (2009)
- 7) O. Monje, J. M. Surma, M. J. Kayatin, and J. L. Perry, *46th International Conference on Environmental Systems*, ICES-2016-321 (2016)
- 8) T. Nagase, M. Goto, Y. Sakai, S. Nakanoya, K. Ishiwata, Y. Matsumoto, *48th International Conference on Environmental Systems*, ICES-2018-152 (2018)



坂井 洋子
宇宙航空研究開発機構 (JAXA)
有人宇宙技術センター
研究開発員

2016年3月 東京大学工学系研究科化学生命工学専攻修了

2016年4月 JAXA 入社



中野屋 壮吾
宇宙航空研究開発機構 (JAXA)
有人宇宙技術センター
技術領域主幹

1997年 京都大学経済学部卒業

1999年 京都大学大学院工学研究科環境工学専攻修了

1999年 宇宙開発事業団(現JAXA)入社 国際宇宙ステーション「きぼう」開発担当(システムインテグレーション)

Flexible MOF を活用した CO₂ 吸着分離プロセスの可能性

Possibility of CO₂ separation and capture using flexible metal-organic framework

京都大学大学院工学研究科化学工学専攻
Department of Chemical Engineering, Kyoto University

信州大学先鋭領域融合研究群先鋭材料研究所
Research Initiative for Supra-Materials, Shinshu University

平出 翔太郎、田中 秀樹
Shotaro Hiraide, Hideki Tanaka

1. はじめに

昨今のエネルギー情勢に鑑みると、蒸留を始めとする熱エネルギーに依存した分離方法からの脱却は急務であり、多孔性材料を用いた吸着・膜分離による代替が求められている¹⁾。この最重要課題を前に近年注目を集めているのが、多孔性配位錯体 (Metal-organic framework: MOF)、とりわけ、その中でも骨格構造に柔軟性を有する Flexible MOF である。Flexible MOF は、ある閾値の圧力において骨格構造の変形を伴うステップ状の吸着挙動を示す。従来材料には見られないこの特異な現象は『ゲート吸着』や『ブリーディング』などと呼ばれ、構造柔軟性に帰する高い分子認識能や、僅かな圧力操作により容易に吸着成分の脱着・回収が可能といった利点が見込まれている。しかし、Flexible MOF の工業利用を見据えた検討は依然少なく、Pressure swing adsorption (PSA) に代表される吸着分離プロセスを想定した工学的な検討は筆者らの知る限り存在しない。

筆者らの研究グループでは、ゲート吸着挙動の機構解明にいち早く取り組み、ゲート吸着挙動が『構造変形の不安定化』と『ガス吸着による安定化』の熱力学的な均衡により説明できることを明らかにしてきた^{2,3)}。その解析を通じて、ゲート吸着における骨格構造の変形に更なる利点が隠されていることが最近分かってきた。それは、構造変形が吸熱的であるために、ガス吸着による発熱の一部が相殺されることで、温度上昇に起因した吸着性能低下を最小限に留められるというものである⁴⁾。すなわち、非温度制御下で実施される多くの吸着プロセスにおいて、Flexible MOF は吸着等温線からだけでは判断できない有用性を秘めていることになる。この吸着熱の自己抑制能は、もちろん構造変形を生じない従来材料にはない特性であり、高選択

性、高ワーキングキャパシティに次ぐ Flexible MOF の第三の利点と言えよう。

本稿の目的は、これらの Flexible MOF の特性を吸着分離性能として数値化し、従来材料に対する優位性を明らかにすることである。さらに、それらの物性を吸着分離プロセスの処理能力として落とし込み、Flexible MOF を活用した吸着分離プロセスの可能性を模索する。対象系として、Flexible MOF の一種である ELM-11 ([Cu(4,4'-bipyridine)₂(BF₄)₂]_n)⁵⁾ を使用した landfill ガス (CO₂/CH₄) 分離を想定し、従来型 (剛直性) 吸着剤の中で landfill ガス分離に最も有望とされている⁶⁾ HKUST-1 と比較した。

2. 対象プロセス

CO₂/CH₄ 分離には、以下の4つの工程からなる Vacuum pressure swing adsorption (VPSA) 操作を仮定した。① 500 kPa における原料ガス (CO₂:CH₄ = 50:50) の供給・吸着工程、② 250 kPa への塔内減圧および純 CO₂ ガスによる洗浄工程、③ 15 kPa での脱着工程、④ 15 kPa の純 CH₄ ガスによるパージ工程。また、以下の4つの吸着性能について評価し、ELM-11 と HKUST-1 の比較を行った。

1) CO₂ 吸着量: $N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$

2) CO₂ 選択率: $S_{\text{CO}_2}^{\text{ads}} = (N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}/N_{\text{CH}_4}^{\text{ads}})/(y_{\text{CO}_2}/y_{\text{CH}_4})$

3) ワーキングキャパシティ: $\Delta N_{\text{CO}_2} = N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}} - N_{\text{CO}_2}^{\text{des}}$

4) Regenerability: $R = \Delta N_{\text{CO}_2}/N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$

ここで、 N_i は工程 j における成分 i の吸着量、 y_i は気相における成分 i のモル分率、添字“ads”および“des”はそれぞれ VPSA における吸着と脱着工程を表す。

3. 結果と考察

3.1 等温過程における吸着性能評価

Fig. 1 に 298 K における CO₂ と CH₄ の単成分吸着等温線 (a: HKUST-1, b: ELM-11) および混合吸着等温線 (c: HKUST-1, d: ELM-11) を示す。ここで、HKUST-1 については、Chowdury ら⁷⁾ により報告さ

Table 1 等温条件における吸着性能 (298 K)

Indicators		HKUST-1	ELM-11
CO ₂ uptake, $N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$	[mmol/cm ³]	10.2	4.56
CO ₂ selectivity, $S_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$	[-]	8.67	82.3
CO ₂ working capacity, ΔN_{CO_2}	[mmol/cm ³]	9.17	4.56
Regenerability, R	[%]	89.6	100

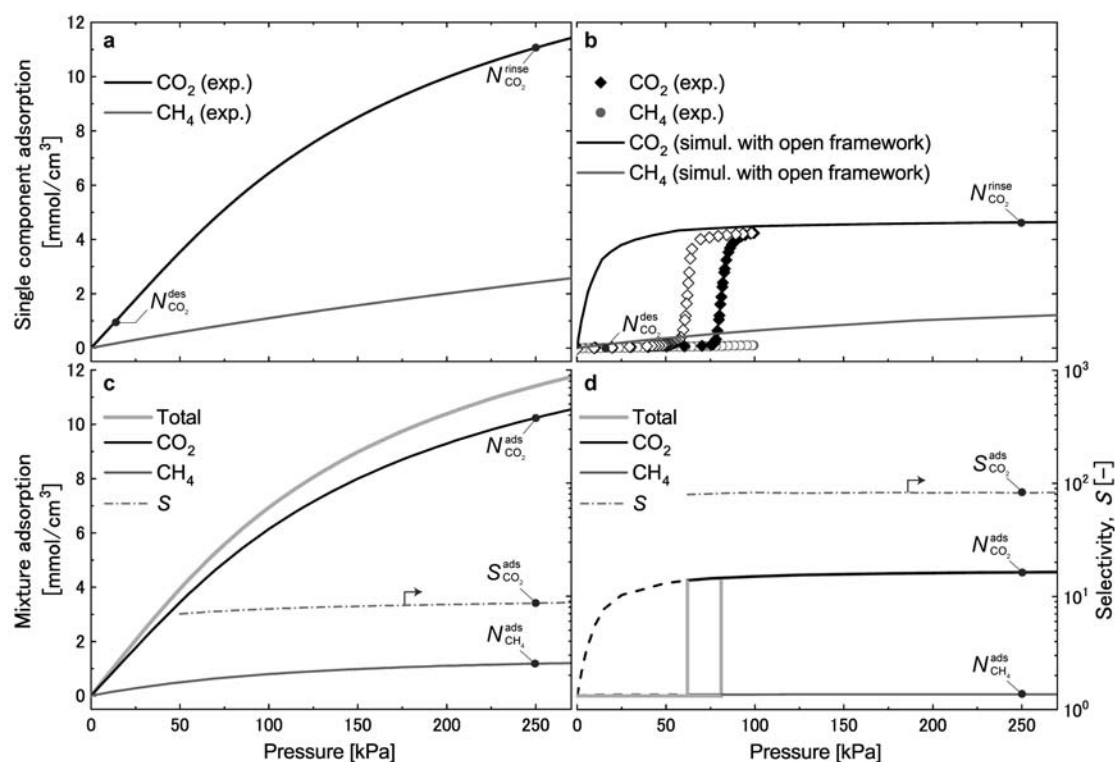


Fig. 1 (a)HKUST-1 および(b)ELM-11 における CO_2 ・ CH_4 の単成分吸着等温線 (298 K)、(c)HKUST-1 および(d)ELM-11 における CO_2/CH_4 混合ガス吸着等温線 (298 K)、混合吸着等温線の横軸は CO_2 分圧

れている Virial-Langmuir 式ならびに Ideal adsorbed solution theory を用いて評価を行い、ELM-11 については、実測および構造変形後の全原子モデル⁸⁾を用いた Grand canonical Monte Carlo シミュレーションによって評価した。まず、吸着工程 (CO_2 分圧 250 kPa) における CO_2 吸着量 ($N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$) について着目すると、HKUST-1 の $N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ は、ELM-11 (4.56 mmol/cm^3) の 2.2 倍にあたる 10.2 mmol/cm^3 であった。これは、HKUST-1 が ELM-11 に比して大きな細孔空間を有しているためと考えられる。一方で、ELM-11 はその構造柔軟性により、 CO_2 分子を包み込むかのような細孔場を有しており、HKUST-1 の 9.5 倍の CO_2 選択率 ($S_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$) を発現することが分かった。さらに、ELM-11 の Regenerability (R) は、最大値である 100% となった。これは、脱着工程 (CO_2 15 kPa) において ELM-11 は無孔性の閉構造となり、吸着量がゼロとなるためである。以上をまとめると Table 1 のようになり、ELM-11 は $S_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ および R で HKUST-1 に勝るものの、細孔容量が重要な $N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ や ΔN_{CO_2} といった基準では劣ることが分かった。

3.2 断熱過程における吸着性能評価

上述の通り、Flexible MOF は吸着等温線には反映

Table 2 断熱条件における吸着性能

Indicators	Starting from 298 K		Starting from 263 K	
	HKUST-1	ELM-11	HKUST-1	ELM-11
$N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}} [\text{mmol/cm}^3]$	2.56	2.16	3.01	4.04
$S_{\text{CO}_2}^{\text{ads}} [-]$	3.84	40.0	4.12	39.9
$\Delta N_{\text{CO}_2} [\text{mmol/cm}^3]$	1.65	2.16	1.69	4.04
$R [\%]$	64.6	100	56.3	100

されない自己熱抑制能という利点を有する。例えば ELM-11 の CO_2 ゲート吸着では、本来生じるべき吸着熱の約 40% が構造変形の吸熱で相殺されていることが明らかとなっている⁴⁾。この特性を加味すべく、熱収支に基づく温度変化を組み込んだ吸着性能を評価し、等温過程との比較を行った。ここで、簡単のために、吸脱着によって生じる熱量変化は全て吸着剤の温度変化に費やされるものとし、吸着剤と気相および吸着剤と塔壁面の熱伝導は無視できるものとした。まず、HKUST-1 について 4 工程の圧力に対応する CO_2/CH_4 混合ガス 500 kPa、 CO_2 250 kPa、 CO_2 15 kPa、および CH_4 15 kPa における積分吸着熱を温度に対してプロットしたものを Fig. 2 a に示す。なお、ここでいう積分吸着熱とは、吸着分子 1 モル当りに除したも

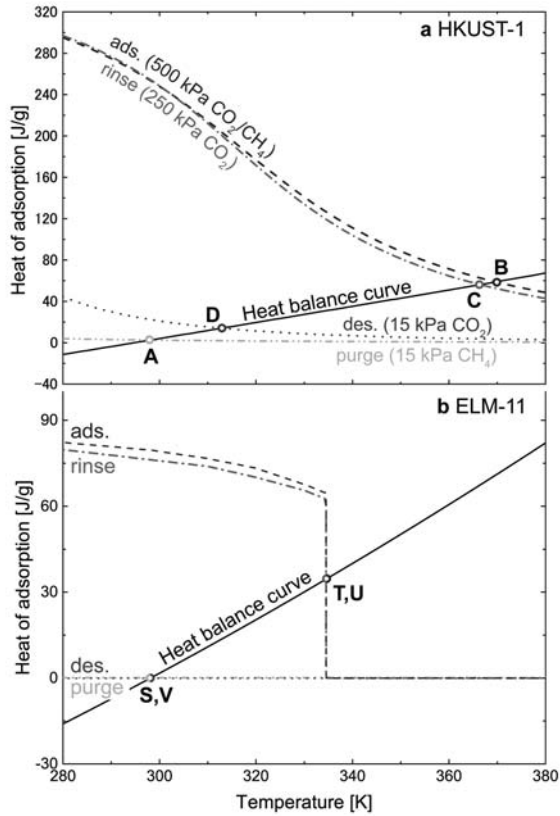


Fig. 2 (a)HKUST-1 および (b)ELM-11 における 4 工程の操作圧力条件での積分吸着熱と系のエンタルピー曲線

のではなく吸着に伴う全発熱量であり、大雑把に近似すれば、我々のよく知る等量吸着熱に吸着量を乗じたものと考えて頂いて差し支えない。すなわち、これらが単調減少している様子は、高温になるほど平衡吸着量が少なくなっていると読み替えられる。さて、実線と二点鎖線の交点である点 A (298 K) より、500 kPa の CO_2/CH_4 混合ガスを吸着させる工程を考えてみる。もし、等温過程であれば、298 K における破線の値である 254 J/g の熱が吸着に伴い生じることがこのグラフから読み取れる。この発生した吸着熱は、等温過程では系外（熱浴）へと排出されるが、断熱過程では系の温度上昇に充てられる。ここで、系の温度変化と熱量の関係は、HKUST-1 の比熱^{9,10)}を温度に対して積分したエンタルピー曲線（実線）で与えられることから、結局、系の温度変化に必要な熱量（実線）と吸着熱（破線）が釣り合う点 B が断熱吸着工程において系が辿り着く状態である。同様に、点 B からの断熱リンス工程 (CO_2 250 kPa) では、系は一点鎖線と実線の交点である点 C に至るはずであり、断熱脱着工程 (CO_2 15 kPa) では点 D に到達し、そして断熱パージ工程を経て点 A の状態へと戻ることによって 1 サイクル

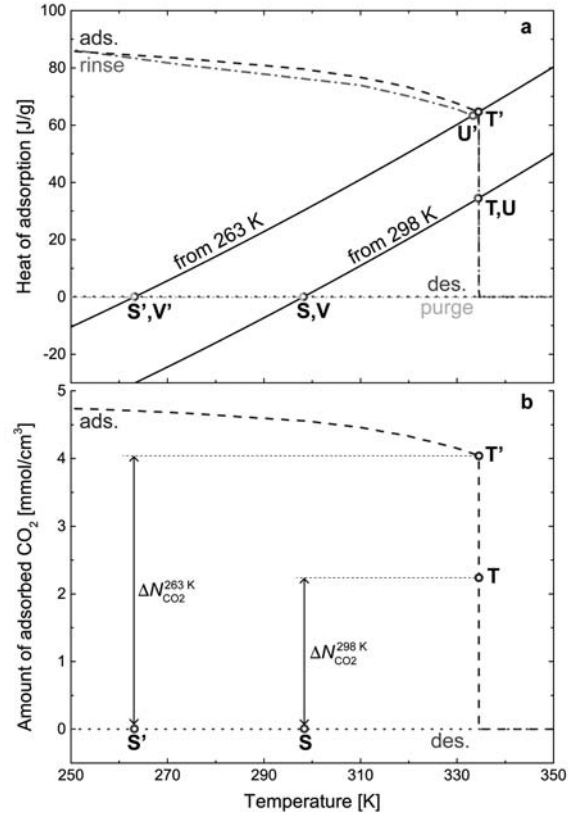


Fig. 3 ELM-11 における (a) 4 工程の操作圧力条件での積分吸着熱と (b) 吸着および脱着工程での吸着等圧線

が完了する。すなわち、断熱過程の吸着性能は、状態 B (371 K) における $N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ と $S_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ 、および状態 B と D (305 K) の差から求まる ΔN_{CO_2} と R によって決定される。

ELM-11 についても同様に解析すると、Fig. 3 b のような結果が得られた。ここで、ELM-11 の比熱については、量子化学計算に基づく Phonon 解析により求めている。また、335 K 付近で破線 (CO_2/CH_4 混合ガス 500 kPa) と一点鎖線 (CO_2 250 kPa) に見られるステップ状の変化は、ゲート吸着に起因するものである。今、点 S (298 K) からの断熱吸着過程を考えると、系は実線と破線の交点 T (335 K) に至る。このとき、点 T はゲート吸着に起因する垂線部を内分しているが、これは内分比に対応する 54% の ELM-11 のみがゲート吸着を生ずることで、系全体として熱収支を満たした状態にあると解釈できる。続いて断熱リンス工程により系は点 U へと移動するが、この操作は系の温度に影響を及ぼさない。その後、15 kPa への断熱脱着により系は点 V へと達するが、このとき全ての吸着分子は脱着された状態にある。すなわち、ELM-11 において断熱リンス工程 (点 V → S) は必要

とされず、プロセスの簡略化が可能である。

以上の熱収支に基づき算出した、断熱過程における HKUST-1 および ELM-11 の 4 つの吸着性能を Table 2 に示す。等温過程とは異なり、ELM-11 の $N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ (2.16 mmol/cm³) は HKUST-1 の 値 (2.56 mmol/cm³) に肉薄しており、 ΔN_{CO_2} にいたっては HKUST-1 (1.65 mmol/cm³) を上回る値 (2.16 mmol/cm³) が得られた。また、 $S_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ については ELM-11 (40.0) および HKUST-1 (3.84) とともに等温過程よりも低下しているが、ELM-11 の値は依然として高水準である。さらに ELM-11 の R については、等温過程と変わらず 100% となることが分かった。

ここまでの検討では、断熱吸着工程の開始温度を 298 K として考えてきた。しかし、熱収支を考えれば VPSA のサイクル定常状態はスタートアップ条件次第で如何様にも変更可能なはずである。そこで、断熱吸着工程が 263 K から開始するサイクルを考えてみると、Fig. 3 a に示すように、新たな VPSA サイクル $S' \rightarrow T' \rightarrow U' \rightarrow V' \rightarrow S'$ が得られた。このサイクルにおいて、断熱吸着工程を示す点 T' はゲート吸着に起因した垂線上から脱しており、Fig. 3 b のようにゲート吸着における吸着量のステップ増加を最大限活用できることが分かった。この場合の吸着性能をまとめると Table 2 のようになり、 $N_{\text{CO}_2}^{\text{ads}}$ に関しても ELM-11 が HKUST-1 を上回る結果が得られた。

HKUST-1 と ELM-11 の等温過程と断熱過程（開始温度 263 K）での吸着性能を改めて Fig. 4 にまとめる。断熱過程において、HKUST-1 は自身の吸着熱による温度上昇の結果、吸着等温線から期待されるほどの性能は発揮されないことが分かった。一方で ELM-11 の場合、等温過程と断熱過程でその性能差はほとんどなく、吸着熱の自己抑制能の有用性を示す結果となった。

3.3 吸着分離プロセス評価

最後に、これまで求めてきた 4 つの吸着性能をもとに、吸着分離プロセスの処理能力を評価する。しかしその前に、Flexible MOF が持つ致命的欠点について言及しておく必要がある。上述の通り、Flexible MOF が示すゲート吸着は、閾値となる圧力(ゲート吸着圧)になるまでは吸着が生じない、ステップ状の吸着挙動である。この事実は、完璧な Regenerability を実現する要因であると同時に、原料ガス中の吸着質分圧をゲート吸着圧以下に下げることができないことも意味

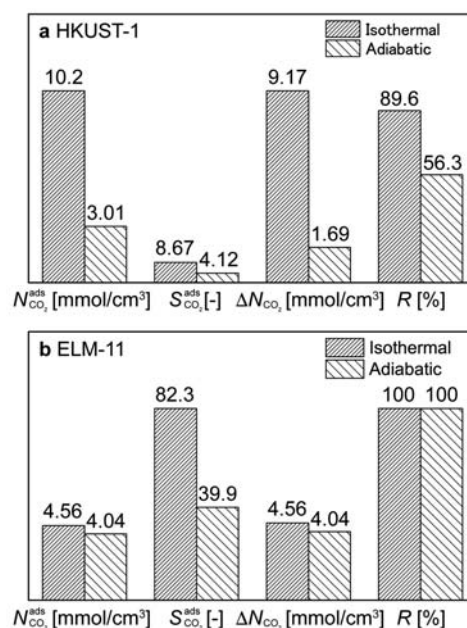


Fig. 4 等温過程と断熱過程における吸着性能の比較

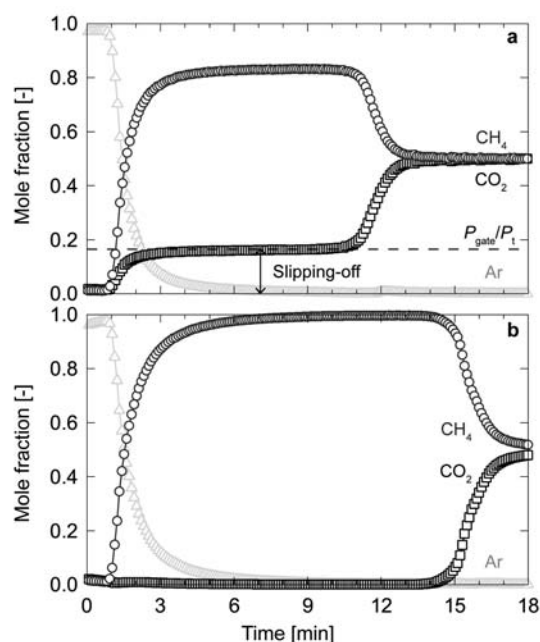


Fig. 5 (a)ELM-11 カラムおよび(b)ELM-11+HKUST-1 二段カラムにおける CO_2/CH_4 破過曲線 (200 kPa, 273 K, Ar パージ)

している。すなわち landfill ガス分離の場合、製品である CH_4 ガスにゲート吸着圧に応じた濃度の CO_2 が混入してしまう問題が生じる。実際に、ELM-11 について CO_2/CH_4 混合ガスの破過曲線を測定した結果が Fig. 5 a である。この測定は全圧 $P_t = 200$ kPa、温度 273 K (等温条件) で行われたが、273 K における CO_2 ゲート吸着圧 $P_{\text{gate}} = 33$ kPa と P_t の比にあたる 0.165 のモル分率で CO_2 がカラムから流出していることが確認できる。『スリッピングオフ』と筆者らは称して

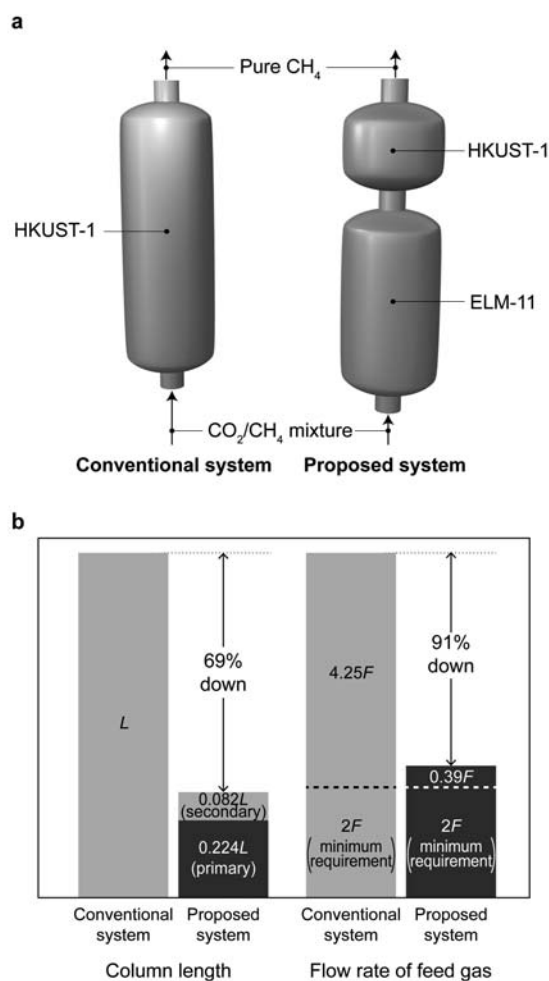


Fig. 6 提案する二段カラムの(a)模式図と(b)従来プロセスとの性能比較

いるこの現象は、2012年に堀毛ら¹¹⁾が報告して以降、有効な解決策が提示されることなく（ともすれば認知されることなく）そのままになっている。

筆者らはこのスリッピングオフを解決すべく、Fig. 6aに示すような二段式の吸着カラムを考案した。発想としては非常に単純明快であり、少量の従来型吸着剤を『フィルター』として、スリッピングオフで漏出する微量の吸着ガスを除去するというものである。実際に、先程と同条件において、ELM-11の後方に少量のHKUST-1を充填した吸着カラムの破過曲線を測定すると、カラム出口から純 CH_4 ガスが得られることが確認できた (Fig. 5b)。

このELM-11とHKUST-1からなる二段式カラムの有用性を確かめるために、規定量 F の CH_4 製品ガスを得るために必要な吸着カラムサイズ（吸着剤量）および原料流量について評価し、HKUST-1のみを充填した従来型カラムとの比較を行った (Fig. 6b)。その際、開始温度263 Kの断熱VPSAプロセスを想

定し、カラム全体に対する巨視的な物質・熱収支式から概算を行った。まず、カラムサイズに着目すると、提案プロセスは二塔を接続したある種冗長なシステムであるにも関わらず、従来型プロセスより全体で69%も小型化できることが分かった。また、ELM-11の優れた吸着特性は原料流量により如実に現れており、流量 F の純 CH_4 ガスを得るのに必要な原料ガス ($\text{CO}_2:\text{CH}_4=50:50$) の量論的な最小流量が $2F$ であることに留意すると、提案プロセスが要求する余剰原料は最小流量の20%弱で済むことが分かった。これは従来プロセスが必要とする余剰原料のわずか9%である。以上のように4つの吸着性能を吸着分離プロセスの処理能力として統合することで、Flexible MOFの工学的優位性を顕在化することに成功した。

4. おわりに

Flexible MOFを活用した吸着分離プロセスの可能性を見出すべく、Flexible MOFの一種であるELM-11について熱収支を考慮した CO_2/CH_4 吸着分離性能の評価、ならびにそれに基づいたプロセス評価を実施した。Flexible MOFが有する吸着熱の自己抑制能は吸着プロセスにおいて極めて有効であり、ELM-11は断熱過程においても等温環境と遜色ない性能を示すことが分かった。一方で、有望視されていたHKUST-1では吸着熱による性能低下が著しく、結果として断熱下においてはELM-11の方が優れたパフォーマンスを示すことが分かった。また、Flexible MOFの欠点であるスリッピングオフを解決可能な二段式吸着カラムを提案し、従来プロセスをはるかに凌駕する処理能力が見込めることを示した。

Flexible MOFの実用化への道のりは長く、金銭的コストの解決や耐水性の向上、ゲート吸着を阻害しない充填方法の確立など、まだまだ検討が不足している部分も多い。しかし、最も欠けていたものは、これらの懸案事項に本腰を入れるだけのモチベーション、すなわち、Flexible MOFの工業的利用価値が明確化されていなかったことと筆者らは考える。本稿がFlexible MOFを活用した吸着分離プロセスの実用化の一助となることを願うとともに、今後も、現在進行中である非等温吸着カラムモデルを用いた詳細検討等を通してFlexible MOFの優位性を訴求していく所存である。

なお、本内容の手法、結果についてより詳細に記した論文が近日中に公開される予定である¹²⁾。

謝辞

本稿の研究成果は、京都大学 宮原稔 教授、坂中勇太 同博士課程学生、日本製鉄㈱ 上代洋 主幹研究員、JASRI 河口彰吾 主幹研究員との共同研究に基づく結果であり、日本学術振興会特別研究員奨励費 (15J05846)、研究活動スタート支援 (19K23574)、基盤研究B (17H03097)、挑戦的研究 (萌芽) (18K18975)、公益信託 ENEOS 水素基金、CREST (JPMJCR1324)、および「物質・デバイス領域共同研究拠点」における「人・環境と物質をつなぐイノベーション創出ダイナミック・アライアンス」の共同研究プログラムの支援のもと行われました。ここに感謝の意を表します。

【参考文献】

- 1) D. S. Sholl and R. P. Lively, *Nature* **532**, 435-437 (2016).
- 2) S. Watanabe, H. Sugiyama, H. Adachi, H. Tanaka and M. T. Miyahara, *J. Chem. Phys.* **130**, 164707 (2009).
- 3) H. Tanaka, S. Hiraide, A. Kondo and M. T. Miyahara, *J. Phys. Chem. C* **119**, 11533-11543 (2015).
- 4) S. Hiraide, H. Tanaka, N. Ishikawa and M. T. Miyahara, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **9**, 41066-41077 (2017).
- 5) A. Kondo, H. Noguchi, S. Ohnishi, H. Kajiro, A. Tohdoh, Y. Hattori, W.-C. Xu, H. Tanaka, H. Kanoh and K. Kaneko, *Nano Lett.* **6**, 2581-2584 (2006).
- 6) Y. S. Bae and R. Q. Snurr, *Angew. Chem. Int. Ed.* **50**, 11586-11596 (2011).
- 7) P. Chowdhury, S. Mekala, F. Dreisbach and S. Gumma, *Microporous Mesoporous Mater.* **152**, 246-252 (2012).
- 8) S. Hiraide, H. Tanaka and M. T. Miyahara, *Dalton Trans.* **45**, 4193-4202 (2016).
- 9) F. A. Kloutse, R. Zacharia, D. Cossement and R. Chahine, *Microporous Mesoporous Mater.* **217**, 1-5 (2015).
- 10) B. Mu and K. S. Walton, *J. Phys. Chem. C* **115**, 22748-22754 (2011).
- 11) S. Horike, Y. Inubushi, T. Hori, T. Fukushima and S. Kitagawa, *Chem. Sci.* **3**, 116-120 (2012).

- 12) S. Hiraide, Y. Sakanaka, H. Kajiro, S. Kawaguchi, M.T. Miyahara and H. Tanaka, *Nat. Commun.* *accepted*.



平出 翔太郎

京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 助教

- 2015 年 4 月 日本学術振興会特別研究員 DC 1
2018 年 3 月 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻博士後期課程修了、博士 (工学)
2018 年 4 月 国立研究開発法人産業技術総合研究所産総研特別研究員
2019 年 5 月 京都大学大学院工学研究科 特定研究員
2019 年 10 月 同助教
現在に至る



田中 秀樹

信州大学先鋭領域研究融合研究群
先鋭材料研究所 教授 (特定雇用)

- 2002 年 4 月 千葉大学電子光情報基盤技術研究センター 講師 (中核的研究機関研究員)
2003 年 4 月 科学技術振興事業団 博士研究員
2004 年 1 月 千葉大学大学院自然科学研究科多様性科学専攻 助手
2006 年 4 月 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 助手 (2007 年 4 月 助教に職名変更)
2011 年 7 月 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 講師
2016 年 4 月 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 准教授
2019 年 4 月 信州大学先鋭領域研究融合研究群先鋭材料研究所 教授 (特定雇用)
現在に至る

会 告

【開催中止】第 34 回日本吸着学会研究発表会

主催：日本吸着学会

共催：金沢大学理工研究域

会期：2020 年 11 月 12 日(木)、13 日(金)

会場：金沢商工会議所会館（石川県金沢市尾山町 9 番 13 号）

【開催中止】第 30 回吸着シンポジウム（吸着夏の学校）

主催：日本吸着学会

日時：2020 年 9 月 8 日(火)～9 日(水)

場所：関西セミナーハウス・修学院きらら山荘（京都府京都市左京区一乗寺竹ノ内町 23）

上記の通り準備を進めておりました第 30 回吸着シンポジウム（吸着夏の学校）および第 34 回日本吸着学会研究発表会の開催について、新型コロナウイルス感染症の拡大を受け検討を重ねた結果、さらなる感染拡大の防止と参加者の健康を守り、安全安心を図るため、いずれも令和 2 年度中における開催を中止することにしました。何卒ご理解賜りますようお願い申し上げます。

関連学会のお知らせ

第 47 回 炭素材料学会年会

主 催：炭素材料学会

共 催：日本化学会、日本学術振興会炭素材料第 117 委員会

協 賛：エネルギー・資源学会、応用物理学会、大阪科学技術センター、化学工学会、紙パルプ技術協会、環境資源工学会、光化学協会、高分子学会、資源・素材学会、情報処理学会、触媒学会、石油学会、繊維学会、炭素繊維協会、電気化学会、電気学会、電子情報通信学会、ナノファイバー学会、日本エネルギー学会、日本化学繊維協会、日本吸着学会、日本金属学会、日本結晶学会、日本結晶成長学会、日本ゴム協会、日本材料科学会、日本材料学会、日本生物工学会、日本生物物理学会、日本セラミックス協会、日本トライボロジー学会、日本熱測定学会、日本バイオインフォマティクス学会、日本バイオマテリアル学会、日本表面真空学会、日本ファインセラミックス協会、日本複合材料学会、日本分析化学会、日本水環境学会、日本薬学会、ニューダイヤモンドフォーラム、バイオメカニズム学会、フラーレン・ナノチューブ・グラフェン学会、プラズマ・核融合学会、木質炭化学会、有機合成化学協会

後 援：炭素協会、日本農芸化学会

開催方法：第 47 回年会はオンラインで実施します。会期期間中に WEB で発表を行う「ライブ発表」と会期前（12 月 4 日夜）から視聴できる発表動画による「オンデマンド発表」の 2 本立てで実施します（両方とも口頭発表扱いとします）。「オンデマンド発表」の質疑は WEB 上の質疑応答システムで行うとともに、会期期間中の指定された時間内で複数の発表者と質問者が WEB ミーティング形式で実施します。また、学生優秀発表賞を設けています。学生優秀発表賞の審査を希望する方は申し込み時に「学生オンデマンド発表」を選択ください。

オンデマンド発表動画配信：2020 年 12 月 4 日(金) 夜～12 月 11 日(金)

ライブ発表および本会期：2020 年 12 月 9 日(水)～12 月 11 日(金)

要旨集発行日：2020 年 12 月 4 日(金)（WEB 要旨となります。印刷物は発行しません）

参加費（WEB 要旨集代込）：振り込みでの支払い期限は 11 月 16 日(月)までです。クレジットカードでの支払い期限は 12 月 11 日(金)です。クレジットカードでの支払いの場合、即時に発表の視聴が可能となります。

炭素材料学会正会員・賛助会員・共催・協賛学協会会員 9,000 円

炭素材料学会学生会員・協賛学協会学生会員 4,000 円

非会員 18,000 円

学生非会員 8,000 円

懇 親 会：2020 年 12 月 11 日(金) 17:00～（オンライン懇親会、参加費無料）

炭素材料学会年会サイト：<http://www.tanso.org/contents/event/conf2020/index.html>

問合せ先：

1. 炭素材料学会事務局（※学会への入会、会員登録情報の更新に関するお問い合わせはこちら）
TEL：03-5389-6359 E-mail：tanso-post@bunken.co.jp
2. 炭素材料学会ヘルプデスク（※年会参加・発表登録に関するお問い合わせはこちら）
〒162-0801 東京都新宿区山吹町 358-5 アカデミーセンター
FAX：03-5227-8632 E-mail：tanso-desk@bunken.co.jp

特別セッション「サステナブル社会に貢献するサステナブルな炭素材料の開発」

持続可能な開発目標（SDGs）が国連サミットで採択されている中で、世の中に溢れる材料もサステナビリティを意識した開発が求められています。炭素材料自体のサステナビリティとサステナビリ

ティーに貢献する炭素材料開発の二つの観点から次世代に向けた炭素材料開発の方向性を探ります。このセッションは、共催、協賛学会会員であれば、炭素材料学会の会員以外でも講演することができます。申込時に分野Aを選択ください。多数のご参加をお願いいたします。

＜特別セッション招待講演者＞

佐野 誠治（トヨタ自動車株式会社 トヨタ ZEV ファクトリー FC 基盤開発部）

和田 匡史（一般財団法人ファインセラミックスセンター 材料技術研究所 環境材料グループ）

神谷 和秀（大阪大学 太陽エネルギー化学研究センター）

インターナショナルセッション

本年度はインターナショナルセッションは行いません。Keynote 講演は一般講演（ライブ発表）の中で行います。

＜Keynote 講演者＞

中林 康治（九州大学）

畠山 義清（群馬大学）

野々口斐之（奈良先端技術科学大学）

学生優秀発表賞

学生の優秀な発表に対して優秀発表賞の表彰を行います。優秀発表賞の審査を希望する方は発表申し込みの際、発表種別で「学生オンデマンド発表」を選択してください。優秀発表賞の表彰は最終日の懇親会の際に行います。

★発表について★

- ・ライブ発表は、討論 10 分を含め 20 分です。招待講演、Keynote Lecture は討論を含め 40 分です。Zoom Webinar を利用します。詳細は HP をご参照ください。発表形態（ライブ発表・オンデマンド発表の区別）は、プログラム編成に際して変更をお願いする場合があります。
- ・オンデマンド発表は、10 分間の発表動画を作成し、後日指定する期間内に申し込みシステムからアップロードしてください。発表動画は mp4 形式のビデオファイルをご用意ください。パワーポイントのスライドショーの記録（ナレーション機能）を利用することで mp4 形式のビデオファイルを簡単に作成できます。グラフィカルに発表内容を示した図（グラフィカルアブストラクト：画像 1 ページ）もをご用意ください。詳細は HP をご参照ください。
- ・動画の著作権は発表者に帰属します。サーバーからは年会終了後、すみやかに消去します。また、視聴者が発表を録画することは固く禁止いたします。
- ・★原稿投稿締切りは 9 月 29 日(火) 15 時です。以降の受け付けは一切行いませんので厳守願います。

年会事前登録について

年会 HP から、大会参加登録をウェブ受付で行った後、登録完了通知内記載の口座宛に、SA で始まる受付番号と氏名をご入力いただき、郵便局備付の払込取扱票を利用し参加費をお支払ください。

（注意：年会参加の登録をウェブ上で行わず大会参加費のみを支払われた場合、入金確認がきちんと行われな可能性があります。必ず年会参加登録をウェブ上で行った後に、参加費をお支払ください。）

お1人様で1枚の払込取扱票をご利用ください。事前登録は入金確認の都合上、11 月 16 日(月)までにお振込みとさせていただきます。11 月 16 日(月)以降のお振込みは、受付いたしません。なお、クレジットカードでの決済の場合は、年会ウェブ受付を行う際に、決済方法より「クレジットカード決済」を選択してください。登録完了後、登録完了通知が配信されると同時に決済が完了いたします。申込登録は 12 月 11 日(金)まで受付可能です。

維持会員一覧

維持会員として、以下の企業各社にご協力を頂いております。

(令和2年7月現在、50音順)

株式会社アドール	株式会社アントンパール・ジャパン
エア・ウォーター株式会社	MHI ソリューションテクノロジーズ株式会社
大阪ガス株式会社	大阪ガスケミカル株式会社
オルガノ株式会社	関西熱化学株式会社
株式会社キャタラー	株式会社クラレ
栗田工業株式会社	興研株式会社
株式会社重松製作所	システムエンジニアリング株式会社
株式会社島津製作所	水ing株式会社
株式会社西部技研	大陽日酸株式会社
株式会社タカギ	月島環境エンジニアリング株式会社
帝人ファーマ株式会社	東ソー株式会社
東洋紡株式会社	ニチアス株式会社
富士シリシア化学株式会社	フタムラ化学株式会社
マイクロトラック・ベル株式会社	ユニオン昭和株式会社
ローム・アンド・ハース・ジャパン株式会社	

編 集 委 員

委員長 児玉 昭雄（金沢大学）

委 員 大坂 侑吾（金沢大学）

上村 佳大（産業技術総合研究所）

田中 俊輔（関西大学）

宮崎 隆彦（九州大学）

余語 克則（RITE）

加藤 雅裕（徳島大学）

近藤 篤（大分大学）

飛弾野龍也（太陽日酸株式会社）

山根 康之（大阪ガスケミカル株式会社）

（五十音順）

Adsorption News Vol.34 No.2 (2020) 通巻 No.133 2020 年 7 月 31日発行

事務局 〒162-0801 東京都新宿区山吹町 358-5 アカデミーセンター

Tel : 03-6824-9370 Fax : 03-5227-8631 E-mail : info@j-ad.org

編 集 大坂 侑吾（金沢大学）

Tel : 076-264-6475 Fax : 076-264-6475 E-mail : y-osaka@se.kanazawa-u.ac.jp

日本吸着学会ホームページ <https://www.j-ad.org/>

印 刷 〒850-0875 長崎県長崎市栄町 6-23 株式会社昭和堂

Tel : 095-821-1234 Fax : 095-823-8740

General Secretary

THE JAPAN SOCIETY ON ADSORPTION (JSAD)

Academic Center, 358-5, Yamabuki, Shinjuku, Tokyo, 162-0801, JAPAN

Tel : 03-6824-9370 Fax : 03-5227-8631 E-mail : info@j-ad.org

Editorial Chairman

Professor Akio KODAMA

Institute of Science and Engineering, Kanazawa University

Kakuma, Kanazawa, Ishikawa 920-1192, JAPAN

Tel : +81-76-264-6472 E-mail : akodama@se.kanazawa-u.ac.jp

Editor

Yugo OSAKA, Kanazawa University

Tel : +81-76-264-6475 E-mail : y-osaka@se.kanazawa-u.ac.jp

Home Page of JSAd: <https://www.j-ad.org/>

本誌に記載された著作物を許可なく複製・公開することを禁ずる。

©2020 The Japan Society on Adsorption