

研究成果報告書

所属機関 山口大学大学院理工学研究科
 職名 教授
 氏名 今井 剛

研究テーマ

新規気体溶解技術によるCO₂回収・貯蔵・活用プロセスの開発

研究報告

1. 研究の背景と目的

現在、地球温暖化への対策が急務であり、そのために化石燃料から再生可能エネルギーへの転換や化石燃料を使用する場合においてもその発生源で二酸化炭素を分離・回収・利活用する技術が必須とされている。言うまでもなく各発生源における排ガスからの二酸化炭素の分離・回収・貯蔵技術は今後の地球温暖化対策における支柱たり得ねばならないものである。さらに、回収した二酸化炭素を利活用して初めて循環型社会への貢献といえる。以上の背景から、本研究は、実用化を見据えた、水のみを媒体とした高効率気体溶解装置による二酸化炭素分離・回収・貯蔵・利活用プロセスに関するスケールアップを含めた研究開発を行うことを目的とする。本研究の実施により、本プロセスを実用化し、それにより回収した二酸化炭素を利活用し、循環型社会実現、さらに途上国への技術移転によるわが国の国際貢献への一助となすことが本研究の意義である。

2. 研究成果及び考察

2. 1 高濃度気体溶解装置

図1に高濃度気体溶解装置の概略について示す。本法は密閉型の高濃度気体溶解装置を用いて二酸化炭素を含む処理対象ガス中の二酸化炭素を液体（主に水）に溶解させた後に処理後のガスを別個に排出・回収することにより処理対象ガス中の二酸化炭素を除去する方法である。この高濃度気体溶解装置は密閉型容器の形状の本体部とその内部に配置されたコップ形状の筒とから構成されるものであり、液体に処理対象ガスをあらかじめ混合した気液混合物を加圧状態で高濃度気体溶解装置内に給送し、高濃度気体溶解装置内に配置されたコップ形状の筒の底部に向けてシャワー状に噴射することにより液泡を発生させ、それにより気液接触面積を増大させて二酸化炭素の分離・溶解効率を高めるようにしたものである。

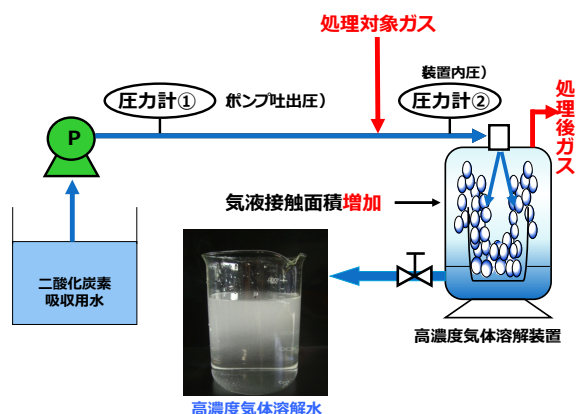


図1 一部改良後の高濃度気体溶解装置の概略

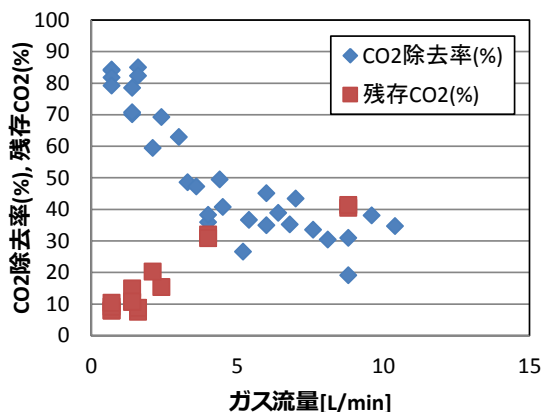


図2 二酸化炭素除去実験の結果（装置改良後）

2. 2 二酸化炭素除去実験（その1）

液（水）流量が14L/min（一定）で、装置内圧力はほとんど大気圧と同様とした。また、水は掛け流しとして、装置内を通過した水は循環しないような設定とした。用いた二酸化炭素含有ガスは窒素：二酸化炭素＝1：1の混合ガスである。この混合ガスの流量を変化させながら実験を行い、あるガス流量に対して10～15分程度運転して、定常的な運転となったときにガス流量、ガス組成を測定し、除

去率を算出した。

水に処理対象ガスをあらかじめ混合した気液混合物を加圧状態で高濃度気体溶解装置内に導入して短絡流の発生を完全に防止し（図1）、高濃度気体溶解装置内に配置されたコップ形状の筒の底部に向けてシャワー状に噴射することにより液泡を発生させ、それにより気液接触面積を増大させて二酸化炭素の分離・溶解効率を高めるように装置を一部改良した。なお、これまでは、二酸化炭素を含む処理対象ガスを高濃度気体溶解装置内に直接導入したため、ガスの短絡（水に接触しないまま処理対象ガスが装置外に排出されるもの）が起り、除去率が70%までしか上がらなかった。その一部改良した装置による二酸化炭素除去結果を図2に示す。装置に導入する処理対象ガスをあらかじめ水に混合して短絡流を完全に防止したことにより、処理対象ガスの流量を2L/min程度まで低下させた場合に、二酸化炭素の除去率はおよそ85%以上まで向上した。

しかしながら、水流量が約14L（掛け流しの循環使用なし）に対してガス流量は2L程度と水流量に対して処理対象ガスの流量がかなり低い。上記実験の結果より水流量に対してより少ないガス流量とすれば除去効率は向上することは明白であり、しかしながら工学的にあまり意味がない（高い除去率ながら極めて除去速度が遅いことは論外）と考えられる。また、現状で二酸化炭素には排出時の濃度基準がないことから除去率ではなく「水を有効に利用した除去量」で最適化すべきと考えられる。

2. 3 新規装置の開発

これまでの装置（図1）は、水と処理対象ガスが同時に気液混合状態で高濃度気体溶解装置内に導入され、その比率を完全に一定となるように操作するのが大変困難なため、時間の経過とともに水位が低下、あるいは上昇することが問題であった。水位が低下すると水が装置内からほとんどなくなるため、液膜の形成が困難になる。反対に水位が上昇するとコップ状の筒の中に水が浸入し、やはり液膜の形成が困難になる。したがって、水位が低下した場合は手でガスの流入量を少量増加させ、反対に水位が上昇した場合は手でガスの流入量を少量減少させ、手で水位調整を行ってきた。このように水位を安定させるのが極めて難しいことから、本研究では水位操作そのものを必要としない装置を新たに開発し、それにより以下の実験を行った。この装置は以下の図3左に示すような外観で、図3右の「マイクロバブル+液膜発生ノズル」を気体溶解装置内に備えており、水位が上昇あるいは低下してもすべての処理対象ガスは水と混合の後に液膜化して、水と十分に接触し二酸化炭素が除去されるようにした。これによって装置内水位を全く調整せずに運転し、処理後ガスが水と同時に排出されるようになった。また、本装置の極めて大きな特徴は「スケールアップが容易であること」である。装置内の「マイクロバブル+液膜発生ノズル」の数を増やすことで容易に大型化に対応でき、本研究では「マイクロバブル+液膜発生ノズル」1つで20L/minを基準として実験を行ったが、5つで100L/min、50個で1,000L/minなどと大型化が容易に可能である。



図3 新規開発の溶解装置（水位変動を全く考慮しなくて良いもの）左：外観、右：ノズル

2. 4 二酸化炭素除去実験（その2）

処理対象気体（モデルガス）はあらかじめ水と混合した上で装置内に導入し、実験を行った。実験条件（1）～（6）を以下に示す。

- ・二酸化炭素を吸収/除去するための水量：60L一定（90Lバケツを使用）
- ・水の循環流量：14L/min（ポンプにより一定：一部の試験で流量を変更）

（1）ガス割合 N_2 : CO_2 = 50 : 50、ガス突入圧力 0.25MPa、ガス流量 20L/min で水温を変化（15℃、20℃、

25℃) させた場合

- (2) ガス割合 $N_2 : CO_2 = 50 : 50$ 、ガス突入圧力 0.25MPa、ガス流量 20L/min、水温 20℃で人工海水（処理水に海水を用いることができるかを確認するため）を用いた場合
- (3) ガス割合 $N_2 : CO_2 = 50 : 50$ 、水温 20℃で、ガス突入圧力を 0.3、0.35MPa に変化させた場合（ガス流量 40L/min）
- (4) ガス割合 $N_2 : CO_2 = 75 : 25$ 、水温 20℃、ガス突入圧力 0.25MPa、ガス流量 20L/min の場合
- (5) ガス割合 $N_2 : CO_2 = 75 : 25$ 、水温 20℃、ガス突入圧力 0.25MPa でガス流量を（4）の約半分（ガス流量 10L/min）にした場合

すべての実験で、回収したガス（二酸化炭素除去後のガス）はその流量を水上置換法で測定し、ガスクロマトグラフ（島津製作所製GC-8APT）でガス組成を測定した。

また、水に吸収・除去された二酸化炭素は以下の方法で算出した。

- (a) 初期二酸化炭素の気体量（初期二酸化炭素のガス割合に初期二酸化炭素の流量を乗じた値）から一定時間ごと（0, 1, 3, 5, 10, 15, 20, 25min）の処理ガス中の二酸化炭素のガス割合（ガスクロによる分析値）に一定時間ごとの二酸化炭素の流量を乗じた値を差し引いた値を一定時間ごとの二酸化炭素溶解量とした。
- (b) 「一定時間ごとの二酸化炭素溶解量」を求めた後、その値を合計し「その実験における二酸化炭素溶解量」とした。具体的には、一定時間ごとの二酸化炭素溶解量を横軸に時間(min)をとってプロットし、プロットを線で結んだ図形を積分することによって、その実験の二酸化炭素溶解量を求めた。

実験結果として、代表的なもの（上記（1）で水温が20℃の場合）を以下に示す。

図4、図5に実験結果を示す。なお、0分の結果はモデルガスの割合を記述している。図4から、ほぼ5～10分後にはpHは飽和に達していることがわかる。また、図5からもほぼ25分後に二酸化炭素は60Lの水に対してほぼ吸収の限界となったことがわかる。このときの二酸化炭素の吸収量は44.9L- CO_2 /60L- H_2O であり、水に対する CO_2 の理論的飽和値（0.88L/L : 20℃）の8割以上（85%）に相当することがわかった。これは、水1tonに対して約700Lの二酸化炭素が溶解することとなり、本装置の有効性が示されたと考えられる。

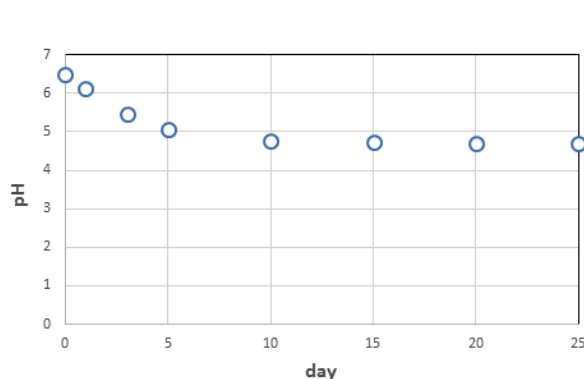


図4 CO_2 吸収媒体の水のpHの経時変化

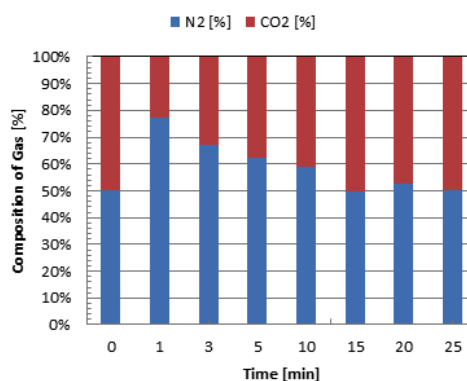


図5 処理後ガス中 CO_2 濃度の経時変化

また、他の条件の実験結果（上記（2）：紙面の関係で図は非表示）から、このときの二酸化炭素の吸収量は44.2L- CO_2 /60L- H_2O であり、水に対する CO_2 の理論的飽和値（0.88L/L : 20℃）に比較してもかなり高い値（84%）となった。したがって、海水を二酸化炭素吸収用に用いても十分な結果が得られることが明らかとなった。

3. 将来展望

二酸化炭素を50%含むガスを用いて、20℃の水に対して理論的飽和溶解度（0.88L/L : 20℃）の8割以上（85%）まで二酸化炭素を溶解させるという成果が得られ、かつ海水を二酸化炭素吸収に用いた場合でもほぼ同じ結果（84%）を得ることができた。このことは、豊富に、安価に存在する海水を二酸化炭素吸収に利用でき、極めて有益な結果であるといえる。本研究の結果を踏まえ、パイロットスケールの装置の開発、パイロット実験を進め、実用化に向けて着実に研究を進めていきたい。

4. 研究発表

- 1) 吉田 航, Nguyen Kim Diem Mai, 今井 剛, 樋口隆哉, 神野有生, 山本浩一, 関根雅彦: 気体溶解技術を用いた低コスト型二酸化炭素分離プロセスの開発, 日本水環境学会第50回年会講演概要集, p. 750, 2016.3 (貴財団への謝辞あり)