

研究状況の概要【中間報告】

氏 名 野内 忠則

1. 研究題目 一般家庭に設置可能なガス燃焼機器用小型 CO₂分離・回収装置の開発

2. 研究内容

2.1 研究背景および目的

家庭部門から排出される CO₂は日本全体の CO₂排出量の約 16%を占めており、地球温暖化抑制のためには、家庭部門の CO₂排出量低減が急務である。しかしながら、都市ガスやプロパンガスを使用する家庭用のコンロやボイラー等のガス燃焼機器から排出される CO₂は、そのまま大気に放出されているのが現状である。そこで、家庭部門から排出される CO₂の大幅低減を目指して、一般家庭に設置可能なガス燃焼機器用の小型 CO₂分離・回収装置を開発することに着目した。近年では、メタネーション技術が精力的に研究開発されているが、本 CO₂分離・回収装置とカーボンニュートラルメタン燃料を組み合わせれば、熱を発生させながら大気中の CO₂を回収できる。本研究では、本小型 CO₂分離・回収装置に適する CO₂吸着材、並びに CO₂回収効率、単位 CO₂回収量当たりの所要エネルギー等を検討すると共に、本装置の連続運転特性を評価して、小型 CO₂分離・回収装置の実用化および普及のために有用となる知見を得ることを目的とする。

2.2 中間報告までの研究内容

2024 年度は、CO₂吸着材（ゼオライト）の選定および小型 CO₂回収装置の試作を目的とした。

2.3 研究結果

2.3.1 吸着材の検討

本項では、燃焼排ガス CO₂に対する、ゼオライト 13X と NaY の CO₂吸着・脱離特性を検討した。

1) 実験装置概要

図 1 に実験装置の概要を示す。本装置は、ガス供給部、CO₂吸着部およびガス分析部から構成される。ガス供給部は、実内燃機関の排気と、除湿空気と CO₂の混合ガス（内燃機関の排気に除湿と浄化を施した場合の排気を模擬）の 2 種類から成る。今年度は、燃焼排ガスを圧送することができる内燃機関を利用したが、今後は、家庭用ガス燃焼機器相当の排ガスでも検討を行う。

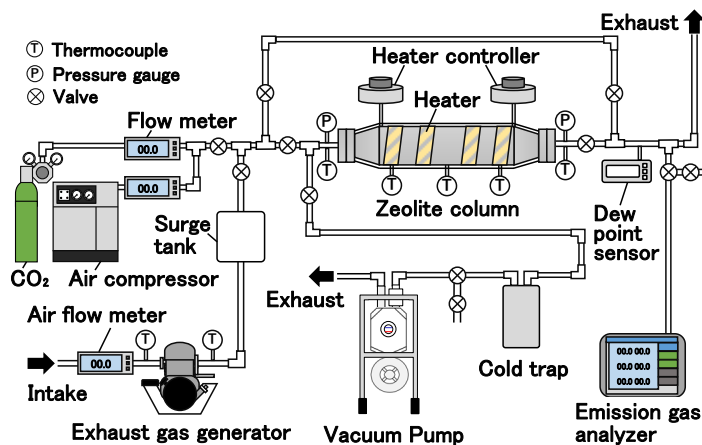


図 1 実験装置概要

2) 供試ゼオライト

表 1 に、供試ゼオライトの仕様を示す。基準として、細孔径と細孔容積が大きく、単位質量当たりの吸着量が多い、フォージャサイト型であるゼオライト 13X を選定した。ゼオライトは Si/Al（シリカアルミナ）比が高くなるに従い、極性分子との親和性が低下する。そこで、ゼオライト 13X と同一骨格構造とカチオン種を持ちながら Si/Al 比の高い NaY 型ゼオライトを比較対象として選定した。形状は、13X、NaY 共にペレットである。ゼオライトはステンレス製カラムに空隙がない様に充填した。また、両試料の充填密度が異なるため、充填重量は異なる。

表 1 供試ゼオライト諸元

Type		13X	NaY
Pore diameter	nm	0.74	0.74
Si/Al ratio	–	1.23	2.75
Pore volume*	mL/g	0.278	0.309
Specific surface area*	m ² /g	624	708
Shaping (diameter)	–	Pellet (Φ 1.5)	Pellet (Φ 1.5)
Max. water ads. capacity*	wt. %	≒ 21.38	≒ 23.63
Column inside volume	L	≒ 0.80	
Zeolite total amount (dried) in the column	kg	≒ 0.511	≒ 0.359

3) 実験方法

① 吸着実験

吸着時間は、CO₂吸着能力が概ね低下する 30 分とした。実験に使用した燃焼排ガス成分組成を表 2 に示す（Exhaust gas 部参照）。吸着特性は、ガス成分のカラム出口濃度を入口濃度で除した対入口濃度比（以下、C/C₀）で示した。C/C₀ = 0.05 を、吸着質が流出し始める、破過点と定義した。CO₂吸着量は、吸着材の単位質量当たりである、比吸着量 kg-CO₂/kg (dry)-ads. で評価した。

表 2 実験用燃焼排ガス組成

Exhaust gas	Exhaust flow rate	L/min	17.6 ± 0.3 @25°C
	O ₂	vol. %	0.69 ± 0.02
	CO ₂	vol. %	11.6 ± 0.1
	CO	vol. %	5.5 ± 0.2
	THC	vol. ppm	680 ± 30
	NO	vol. ppm	170 ± 30
	Absolute humidity at the column inlet	g/kg (DA)	15.0 ± 2.1
	Space velocity	h ⁻¹	≒ 1320
	Superficial velocity	m/s	≒ 0.30
Dehumidified air + CO ₂ gas	Mixture gas flow rate	L/min	17.0
	Mixture gas temp.	°C	15 ± 3
	CO ₂	vol. %	11.5
	Absolute humidity	g/kg (DA)	1.3 ± 0.3
	Space velocity	h ⁻¹	≒ 1275
	Superficial velocity	m/s	≒ 0.29

② 再生実験

ゼオライトの再生は、カラム内を減圧したまま加熱した。40 分までの昇温速度は約 6 °C/min で、60 分以降は約 300°C で一定である。再生時間は 120 分とした。

再生工程で吸着成分が完全に脱離しない場合、吸着成分が残留し、次サイクル以降で吸着性能が低下する恐れがある。そこで、再生性能を評価した。評価は、再生後にカラム前後のバルブを開き、加熱したまま除湿空気（60 L/min, 1.3 ± 0.3 g/kg (DA)）をカラム入口に 15 分間導入し、

出口ガス濃度を計測した。水分は計測していない。残留 CO₂ の量を CO₂ 破過点での CO₂ 吸着量で除して、CO₂ 残留割合と定義した（式 1）。

$$R_{CO_2_res.} = \frac{M_{CO_2_res.}}{M_{CO_2_ads.}} \times 100 \quad (1)$$

ここで、 $R_{CO_2_res.}$: CO₂ 残留割合 [%], $M_{CO_2_res.}$: 再生後 CO₂ 残留量 [g], $M_{CO_2_ads.}$: CO₂ 破過点時 CO₂ 吸着量 [g] である。

図 2 に残留成分計測タイミングを示す。残留成分を蓄積するため、吸着・再生工程を 3 サイクル繰り返した後に計測した。再生工程終了後はカラムを自然冷却し、各サイクル共、吸着開始時のゼオライト温度が 20°C ± 3°C となるようにした。

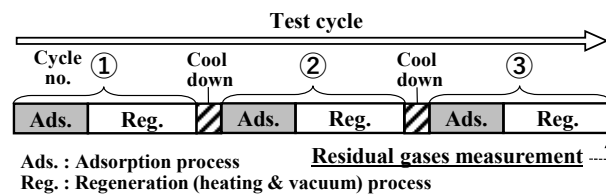


図 2 カラム内残留成分計測タイミング

4) 実験結果

図 3 に、ゼオライト 13X と NaY 型ゼオライトの CO₂ 比吸着量と CO₂ 残留割合を示す。両者共、CO₂ 比吸着量の 3 サイクル間での変化は小さい。NaY は、13X に比べて、CO₂ 比吸着量が 34% 程低い (n=1 比較) が、CO₂ 残留割合も 75% 程低くなった。

以上から、Si/Al 比の高い NaY を使用すると、CO₂ 吸着性能は低下するが、逆に、CO₂ 脱離（ゼオライト再生）性能は改善する。本研究では、CO₂ 吸着性能の低下よりも、再生性能の改善の方が上回った。よって、CO₂ 吸着性能劣化防止や省エネルギーの点から、NaY を吸着材として選定した。

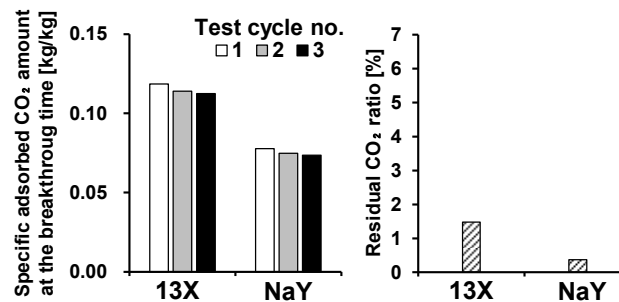


図 3 ゼオライト 13X と NaY の CO₂ 比吸着量と CO₂ 残留割合

2.3.2 圧カスイング法の減圧再生時間が CO₂ 吸着性能に及ぼす影響

前項より、NaY 型ゼオライトの方が、同 13X に比べて再生性能が優れると分かった。そこで本項では、NaY 型ゼオライトに、除湿・浄化を施した燃焼排ガス（表 2 の Dehumidified air + CO₂ gas 部参照）を流通させて、圧カスイング方式での CO₂ 吸着・脱離特性を検討した。検討では、CO₂ 吸着時間を、NaY 型ゼオライトの CO₂ 破過時間付近の 6.5 min（空間速度 1275 h⁻¹ 時）一定とした。減圧による再生時間を、吸着時間 5 倍の 32.5 min と、同 2 倍の 13 min とし、両者の違いが CO₂ 吸着性能へ及ぼす影響を調査した。なお、吸着・減圧再生工程を 5 サイクル繰り返して評価した。

図 4 に、再生時間を吸着時間 5 倍の 32.5 min とした時の CO₂ 破過曲線を示す。横軸はガス流通時間、縦軸は対入口濃度比である。線種の違いは、サイクル数を示す。1 サイクル目は、排ガス流通後、数分は対入口濃度比が 0 であり、CO₂ は完全吸着した。CO₂ 破過時間は 6.47 min であった。

2 サイクル目を見ると、排ガス流通直後（0.2 min 付近）に、対入口濃度比が 0.1 となった。これは、1 サイクル目に吸着した CO_2 の一部がカラム内に残留し、その残留 CO_2 が 2 サイクル目の排ガスによりカラム外へ押し出されたためと考えられる。なお、4 分付近で対入口濃度比が急増した。これは、 CO_2 の吸着が吸着平衡に達したためと思われる。その後、3 サイクル目を見ると、排ガス流通直後の対入口濃度比が増大しており、 CO_2 の残留量が増加したといえる。しかし、4 および 5 サイクル目は同一曲線となった。これは、各サイクルの CO_2 吸着量と脱離量に差が無くなるためと考えられる。この結果から、4 サイクル目以降は、 CO_2 破過曲線は同一になることが予想される。

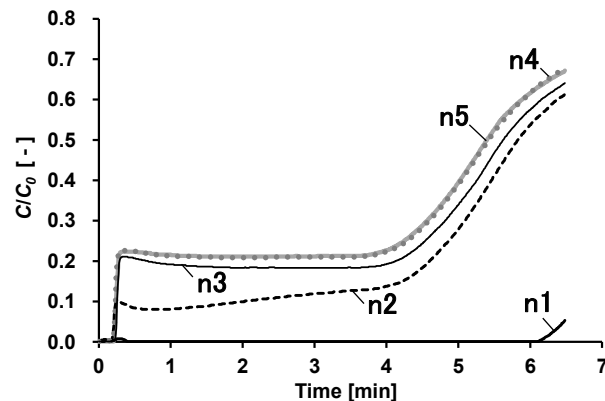


図 4 CO_2 破過曲線

（ CO_2 濃度 11.5%， CO_2 吸着時間 6.5 min，減圧再生時間 32.5 min，5 サイクル繰り返し）

図 5 に、排ガスの吸着時間を 6.5 min のまま、減圧再生時間を 13 min に短縮した結果を示す。1 および 2 サイクル目は、減圧再生時間 32.5 min の結果と類似した。しかし、3 サイクル目では、排ガス流通後の対入口濃度比が 0.3 に上昇した。対入口濃度比が増加し始める時期も 3 min 過ぎ頃へ早期化しており、減圧再生時間 32.5 min の結果と異なる。これは、再生が不十分で、 CO_2 残留量が増加したためと考えられる。なお、4 および 5 サイクル目の破過曲線はほぼ同等である。

以上の結果から、減圧時間が短いと、再生性能が低下する。しかし、減圧時間を吸着時間の 5 倍から 2 倍へ短縮した場合でも、4 サイクル目開始直後の対入口濃度比は、0.1 ポイント程度しか増加しない。即ち、 CO_2 回収量はやや低下するものの CO_2 回収自体は可能と考えられる。なお、 CO_2 回収装置の小型化や制御の簡素化の点からは、減圧時間は短い方が望ましい。そこで本研究では、減圧再生時間を吸着時間の 2 倍として、 CO_2 吸着塔を 3 塔で、 CO_2 回収装置を試作することとした。

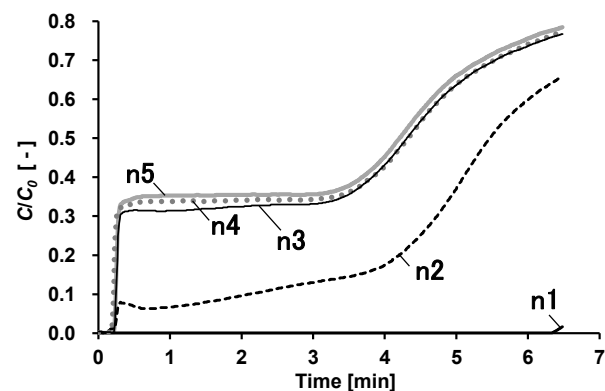


図 5 CO_2 破過曲線

（ CO_2 濃度 11.5%， CO_2 吸着時間 6.5 min，減圧再生時間 13.0 min，5 サイクル繰り返し）

2.3.3 小型 CO₂回収装置の試作

CO₂吸着塔（カラム）を3塔有する、物理吸着法圧カスイング方式小型 CO₂回収装置の主要部品レイアウトを決定した。図6に、当初計画した装置の模式図を示す。図7に、製作中の装置の写真を示す。実際の装置は、当初の計画に近い構成となった。寸法は、高さ 0.64 m × 幅 0.45 m × 奥行 0.56 m（= 0.161 m³）であり、小型とした。吸着材カラムは、内径φ40×0.5 m であり、0.628 L/本である。CO₂回収タンク容量は、12 L（気相、内圧約 1MPa）である。

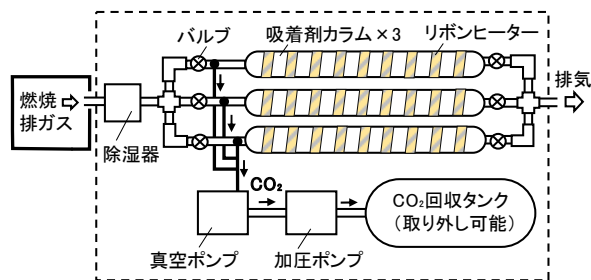


図6 小型 CO₂回収装置模式図（計画時）

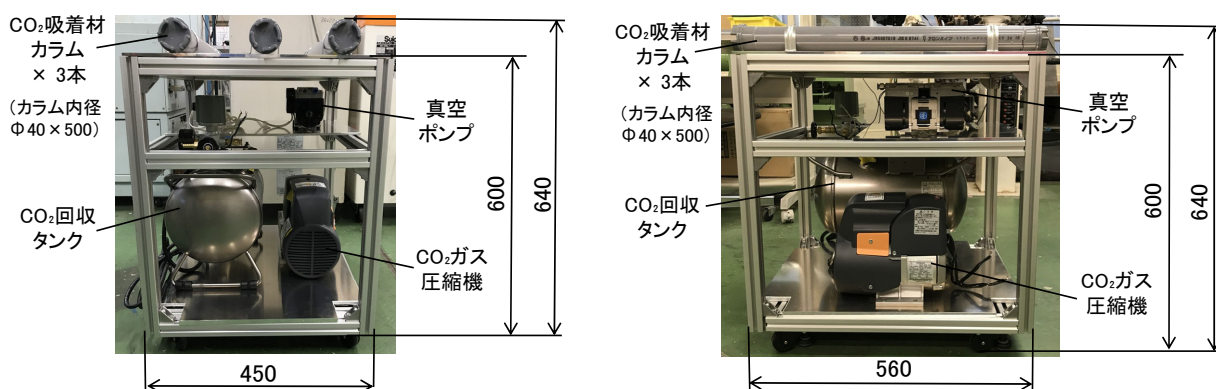


図7 試作中の小型 CO₂回収装置

3. 研究成果、課題等

3.1 成果まとめ

- 1) 燃焼排ガス（CO₂濃度 11.5%）に対する、13X と NaY ゼオライトの CO₂吸着と再生性能を比較した。その結果、NaY 型は CO₂吸着性能が劣るが、再生性能が大幅に優れると分かった。CO₂吸着性能の劣化防止や省エネルギー再生の点から、NaY ゼオライトを吸着材として選定した。
- 2) NaY 型ゼオライトに除湿・浄化を施した燃焼排ガスを流通させて、圧カスイング方式の減圧時間が再生性能に及ぼす影響を検討した。その結果、減圧時間が、CO₂吸着時間の 2 倍程度あれば、CO₂の吸着と脱離を安定して繰り返すことが出来ると分かった。
- 3) CO₂吸着塔を 3 塔有する（再生時間が CO₂吸着時間の 2 倍となる）、圧カスイング方式小型 CO₂回収装置の主要部品レイアウトを決定した。装置寸法は、高さ 0.64 m × 幅 0.45 m × 奥行 0.56 m（= 0.161 m³）であり、CO₂回収タンク容量は、12 L（気相、内圧約 1MPa）である。

3.2 課題まとめ

- 1) NaY 型ゼオライトに吸着した CO₂を減圧のみで完全に脱離させることは不可能であることと、ゼオライトに残留した CO₂が次の吸着サイクルでカラム外へ流出してしまうことが判明した。即ち、現状の仕様では CO₂回収率が 100%を下回るため、CO₂回収効率の向上が課題である。
- 2) CO₂回収装置における、吸着塔 3 塔間のガス供給ライン切り替えや、真空ポンプおよび圧縮機の起動・停止を手動とすると、操作が複雑になる。これらの操作を自動化することが今後の課題である。これには、マイコン又はシーケンサーおよび電磁弁等を購入する必要がある。

4. 今後の予定 （助成希望金額とその用途についてもご記入願います）

今後の研究予定を以下に記す.

- ① 家庭用燃焼機器から排出されるガスは空気で希釈されて, CO₂濃度が低いと考えられるため, 低 CO₂濃度条件 (3 ~ 4 %) の燃焼排ガスにおいて, CO₂吸着・脱離特性の基礎データを取得する.
- ② CO₂分離・回収装置の自動制御化および装置の動作確認を行う.
- ③ 燃焼排ガスの模擬および実ガスを用いて, CO₂回収性能および所要エネルギー評価を行う.

表 3 に, 2025 年 1 月から 2026 年 3 月までの研究スケジュールを示す.

表 3 研究スケジュール (2025. 1 ~ 2026. 3)

		2025 y			2026 y	
大項目	小項目	1 - 3	4 - 6	7 - 9	10 - 12	1 - 3
低CO ₂ 濃度燃焼排ガスのCO ₂ 吸着・脱離の基礎特性データ取得		→				
CO ₂ 回収装置自動化と動作確認	ガス配管の設置・組立	→				
	自動制御化 (シーケンサーでの電磁弁, 真空ポンプ等制御)		→			
	動作確認			→		
CO ₂ 回収装置CO ₂ 回収性能・エネルギー評価	模擬燃焼排ガス			→		
	実燃焼排ガス(給湯器又はガス燃焼機器相当)				→	
研究総括						→