

平成 30 年 5 月 29 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H05554

研究課題名(和文)循環流動層を用いた省エネルギーなガス吸収分離装置の基礎研究

研究課題名(英文) Design of energy-saving gas separation process using circulating fluidized bed

研究代表者

甘蔗 寂樹 (KANSHA, YASUKI)

東京大学・生産技術研究所・特任准教授

研究者番号：10544083

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,000,000円

研究成果の概要(和文)：温室効果ガス排出量の削減が望まれており、産業プラントの排出ガス中に含まれる二酸化炭素の分離回収・利用技術や貯留技術が注目を集めている。これらの技術では、二酸化炭素を分離回収する際に、非常に大きなエネルギーを消費していることが知られている。そこで、本研究では、粒子を吸収材として用いつつ、循環流動層とヒートポンプにてプロセス内にて熱を循環利用する省エネルギーな二酸化炭素分離プロセスを提案するとともに、そのプロセス実現に向け、吸収反応や流動などの実験による基礎解析と汎用プロセスシミュレーターを用いて本プロセスが要するエネルギー消費量を算出し既存のプロセスと比較する基礎研究を実施した。

研究成果の概要(英文)：Carbon dioxide capture and storage technology has attracted recent attention for the mitigation of CO₂ emissions; however, to facilitate its commercial implementation, its capture cost should be further decreased. This research proposes an innovative energy-saving process using chemical absorption by a solid in a circulating fluidized bed. In this process, the reaction heat that accompanies absorption is successfully supplied through a heat pump to achieve thermal decomposition in a regenerator, leading to recirculation of all process heat into the process. Absorption and fluidization experiments were conducted to determine the separation performance. An energy balance of the proposed process was simulated using the experimental data with a commercial process simulator as compared with conventional counterparts.

研究分野：プロセス設計

キーワード：プロセス設計 流動層 ガス分離 省エネルギー

1. 研究開始当初の背景

近年、温室効果ガス排出量の削減が望まれており、産業プラントの排出ガスに含まれる二酸化炭素の分離回収・利用技術や貯留技術が注目を集めている。これらの技術では、二酸化炭素を分離回収する際に、非常に大きなエネルギーを消費していることが知られている。実際、二酸化炭素分離回収・貯留技術全体で消費するエネルギーの75~80%のエネルギーを消費していると言われている。そのため、これらの二酸化炭素を利用や貯留する技術を社会に導入・普及するには省エネルギーな二酸化炭素分離回収プロセスの開発が必要不可欠である。

二酸化炭素分離回収手法の中で実用化の検討例が多い手法は、アミン水溶液に排ガスを通し、排ガス中の二酸化炭素を吸収し分離・除去する手法である。本手法は、連続的に二酸化炭素を分離回収することができるために、発電所や製鉄所などの大規模なプラントに適していると言われている。本手法では、二酸化炭素を吸収したアミン水溶液から二酸化炭素を脱離し、アミン水溶液を再生する際に吸熱的に反応熱が必要となること、水溶液から二酸化炭素を分離するために蒸発(凝縮)潜熱に相当する熱が必要である。この二つの熱量が大きいことから、二酸化炭素分離回収のエネルギー消費量が大きくなっている。

2. 研究の目的

本研究では、二酸化炭素分離回収技術の社会への導入・普及を目指し、省エネルギーな二酸化炭素分離回収プロセスを提案した。また、提案するプロセスの基礎研究を実施し、そのプロセスについて評価した。提案プロセスは以下の特徴を有している。

- 1) 化学吸収分離手法を用いることで二酸化炭素を連続的に分離できる。
- 2) 吸収材は、固体粒子とすることで、気液分離を必要としない。そのため、相変化に伴う潜熱を供給する必要がない。
- 3) 二酸化炭素を吸収した際に生じる吸収熱をヒートポンプにて、昇温し、吸熱反応である吸収材からの二酸化炭素の脱離に供給する。
- 4) 吸収反応は流動層にて行うことで、気固の接触が向上し、反応が促進する。
- 5) 循環流動層とすることで、二酸化炭素を連続的に分離しつつ、吸収熱の一部を脱離反応の熱として輸送する。

3. 研究の方法

前述の各特徴が全体プロセスに与える影響を実験にて明らかにするとともに、実験で得たデータを用いて全体プロセスが必要とするエネルギー消費量を汎用のプロセスシミュレータを用いて、明らかにする。そのため、本研究では実験とシミュレーションを並行して進める。

4. 研究成果

(1) 提案するプロセス

提案プロセスの概観を図1に示す。ヒートポンプの利用が可能となる温度域から吸収材として酸化亜鉛を選定した。分離前の排ガスは1から供給され、昇圧後に、流動層である吸収塔に供給される(2)。このとき、排ガスを流動化ガスとして利用し、層内にて酸化亜鉛は流動化される。酸化亜鉛が二酸化炭素と反応することで生成される炭酸亜鉛は再生塔に供給され(4)、未反応のガスは系外に排出される(3)。再生塔は移動層となっており、塔内にて熱分解反応が起こり、二酸化炭素が脱離する。この反応で、必要となる熱は、吸収熱をヒートポンプにて組み上げ、供給される。結果として、プロセス内部で熱が循環利用され、省エネルギーとなる。熱分解反応により脱離した二酸化炭素は層上部より排出され(6)、一部は移動層底部より供給されるが(8、9)、大部分は系外に排出される(7)。同時に、酸化亜鉛は吸収塔に供給される(5)。吸収塔に流動層を用いることで、気体と固体の混合が進み、反応が促進すると同時に、ヒートポンプへの伝熱が促進する。

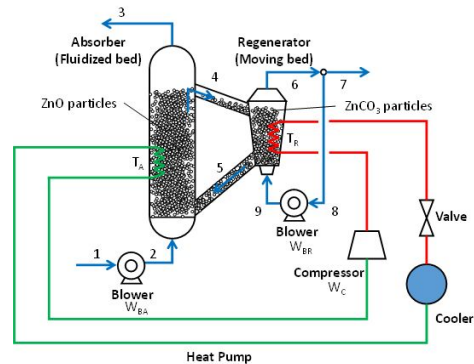


図1 提案プロセス概観

(2) 反応・流動実験

酸化亜鉛の二酸化炭素吸収反応基礎解析を実施する目的で、図2に示すように試験管に酸化亜鉛5g(和光純薬工業製、267-00355)を配し、ヒーターにて各温度に調整して、二酸化炭素と窒素からなる混合ガスを試験管に供給して、出口側の二酸化炭素濃度を測定して、二酸化炭素の吸収速度を測定した。

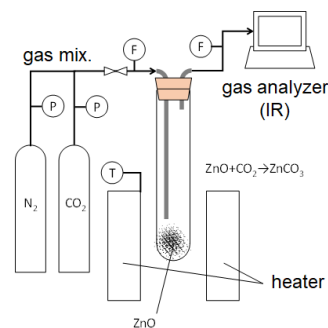


図2 実験装置

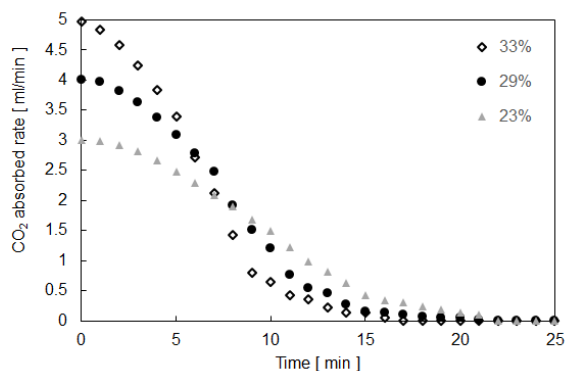


図 3 吸収等温線

結果の一例として、反応温度を 100℃、二酸化炭素(5, 4, 3 mL/min)と窒素(10 mL/min)からなる混合ガスを供給した例を図 3 に示す。このとき、反応は 15 分程度で終わっていることが確認できる。しかしながら、実際に反応した酸化亜鉛の量は、試験管に配した 5 g のうち、2.5%程度しか反応していないことが確認された。また、反応温度を 80℃、120℃に変更して繰り返し実験を行ったが反応速度に顕著な差は見られなかった(図 4)。さらには、酸化亜鉛の量を 3 g に変更して同様の実験を行ったが、総反応量が大きく変更することはなかったことから、試験管に配した酸化亜鉛の上部の表面のみが反応していると考えられる。

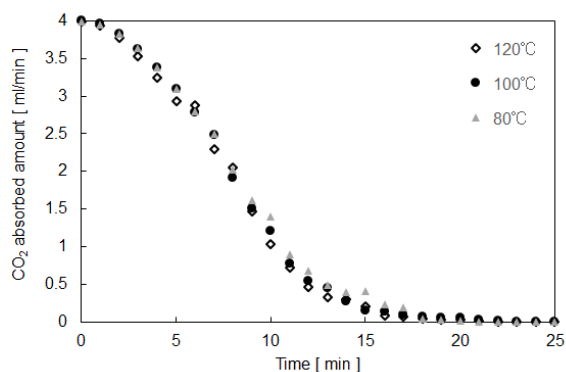


図 4 吸収等温線

そこで、二酸化炭素と酸化亜鉛の反応を促進するために、酸化亜鉛を粒子化し、反応器を流動層とすることとした。まず、図 5 に示す内径 50 mm のガラス製の流動層に、酸化亜鉛粒子(中位径: 40 μm、大川原化工機製) 457 g を準備して、最小流動化ガス流量を測定したところ、2.6 L/min であり、圧損は 0.6 kPa であることが分かった(図 6)。さらには、実際に循環流動層のコールドモデルを構築して、模擬粒子の粒子循環量を測定した。

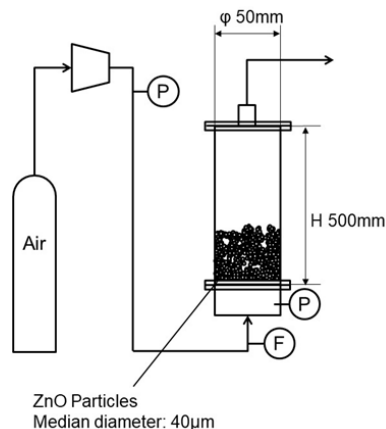


図 5 流動実験装置

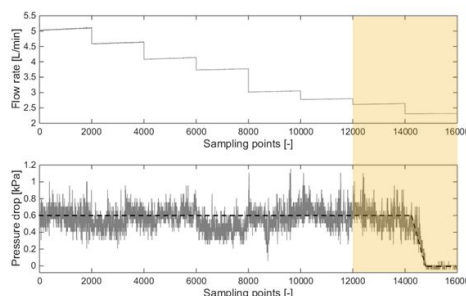


図 6 最小流動化速度測定

(3) シミュレーション

(2) の実験結果から、汎用のプロセスシミュレータ (PRO/II Ver. 9.1) を用いて、全体プロセスで消費するエネルギー量を推算した。このとき、実験にて測定した最小流動化ガス流量の 2 倍となる 5.2 L/min を見積もっている。また、その時の圧損は 0.6 kPa とし、ヒートポンプで用いる作動流体は水を選択している。シミュレーションで用いた状態方程式として、Soave-Redlich-Kwong 式を用いた。同時に、圧縮機やプロアの断熱効率を 80% としている。装置内の圧損は存在しないと仮定した。また、熱分解反応が起こる移動層を形成する際に生じる圧損は二酸化炭素吸収反応の際の気泡流動層に比べ十分に小さいと考えられるため、本シミュレーションではエネルギー消費量を算出する際に加味していない。同時に、二酸化炭素の転化率は 10% と仮定した。二酸化炭素吸収と熱分解の各反応の温度を変更してシミュレーションを行い、その結果を次の表 1 にまとめた。

表 1 各反応温度とエネルギー消費量

Temperature at absorber (T_a) [°C]	100	100	120	120
Temperature at regenerator (T_R) [°C]	180	200	180	200
Work for heat pump (W_C) [MJ/kg-CO ₂]	0.46	0.58	0.32	0.43
Work for blower (W_{SA}) [MJ/kg-CO ₂]	0.04	0.04	0.04	0.04
Total Work ($W_C + W_{SA}$) [MJ/kg-CO ₂]	0.50	0.62	0.36	0.47

adiabatic efficiency of compressor and blower: 80%

従来のモノエタノールアミン水溶液を吸収材とした化学吸収分離プロセスでのエネルギー消費量が約 4.1 MJ/kg-CO₂ である。表 1 を見てわかる通り、提案する二酸化炭素分離プロセスではその値に比べ、どの反応温度においても 1/7 以下と非常に小さな値となっている。

吸収実験において反応温度はあまり影響しなかったが、熱交換温度差が必要であることから、実際の反応温度は 100、180 を仮定している。

断熱効率は処理量の大きい大規模な装置において高い値を示す。そのため、バイオマスボイラなどの比較的小型の装置に本プロセスを導入した場合のエネルギー消費量として、断熱効率を 60% としてシミュレーションを実施した。その結果、既存のモノエタノールアミン水溶液を吸収材とした化学吸収分離プロセスでのエネルギー消費量の 1/4 以下となることが分かった。

現在、アミン水溶液を吸収材とした化学吸収分離プロセスを火力発電所に導入することで、火力発電所の発電効率が 8~10% 程度低下すると言われている。提案するプロセスはさらに詳細に検討する必要があるが、本研究で得られたシミュレーション結果をこの値に換算すると、発電効率の低下は 2% 以下にまで抑えられると考えられる。

これらの検討より、提案するプロセスは、二酸化炭素分離回収技術を大幅に省エネルギー化する可能性を有したプロセスであると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

Y. Kansha, H. Mizuno, Y. Kotani, M. Ishizuka, C. Song, Q. Fu, A. Tsutsumi: Numerical investigation of energy saving potential for self-heat recuperation, Chem. Eng. Trans., Vol. 45 (2015) pp. 187-192

Y. Kansha, M. Ishizuka, H. Mizuno, A. Tsutsumi: CO₂ Separation Process Using Circulating Fluidized Bed Based on Exergy Recuperation, Chem. Eng. Trans., Vol. 52 (2016) pp. 109-114

M. Ishizuka, H. Mizuno, Y. Kansha, A. Tsutsumi: Control of Solid Mass Flow Rate in Circulating Fluidized Bed by a Pulsed Gas Flow, Chem. Eng. Trans., Vol. 52 (2016) pp. 127-132

Y. Kansha, M. Ishizuka, H. Mizuno, A. Tsutsumi: Design of Energy-Saving Carbon Dioxide Separation Process Using Fluidized Bed, Appl. Therm. Eng. Vol. 126 (2017) pp. 134-138.

〔学会発表〕(計 13 件)

Y. Kansha, H. Mizuno, Y. Kotani, M.

Ishizuka, C. Song, Q. Fu, A. Tsutsumi: Numerical investigation of energy saving potential for self-heat recuperation, 18th Conference Process Integration, Modeling and Optimization for Energy Saving and Pollution Reduction (PRES'15), Aug. 23-27, Kuching, Malaysia (2015)

Y. Kansha, H. Mizuno, M. Ishizuka, A. Tsutsumi: Self-Heat Recuperation Technology for Sustainable Process Design, 2015 AIChE Annual Meeting, Nov. 8-13, Salt Lake City, UT, USA (2015)

石束 真典, 水野 寛之, 菅 蔗 寂 樹, 堤 敦 司: パルス状ガス供給による循環流動層の粒子循環量制御, 第 21 回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 北九州, 12 月 10 日 (2015) pp. 39-41

A. Tsutsumi, Y. Kansha, H. Mizuno, M. Ishizuka: Control of particle circulation rate in circulating fluidized bed by a pulsed gas flow, Fluidization XV, May 22-27, Fairmont Le Chateau Montebello, Quebec, Canada (2016), 166

Y. Kansha, M. Ishizuka, H. Mizuno, A. Tsutsumi: CO₂ separation process using circulating fluidized bed based on exergy recuperation, 19th Conference Process Integration, Modeling and Optimization for Energy Saving and Pollution Reduction (PRES2016), Aug. 27-31, Prague (2016)

M. Ishizuka, H. Mizuno, Y. Kansha, A. Tsutsumi: Control of solid mass flow rate in circulating fluidized bed by a pulsed gas flow, 19th Conference Process Integration, Modeling and Optimization for Energy Saving and Pollution Reduction (PRES2016), Aug. 27-31, Prague (2016)

Y. Kansha, M. Ishizuka, H. Mizuno, A. Tsutsumi: Design of Energy Saving CO₂ Separation Process Using Circulating Fluidized Bed, 2016 AIChE Annual Meeting, Nov. 13-18, San Francisco, CA, USA (2016)

Y. Kansha, M. Ishizuka, H. Mizuno, A. Tsutsumi: Energy Saving CO₂ Separation Process Using Fluidized Bed, The 5th Asian Conference on Innovative Energy and Environmental Chemical Engineering (ASCON-IEEChE 2016), Nov. 13-16, Yokohama, Japan (2016)

石束 真典, 菅 蔗 寂 樹, 堤 敦 司: パルス状ガス供給による循環流動層の粒子循環量制御, 第 22 回流動化・粒子プロ

セッションシンポジウム、第 12 回反応装置・プロセスシンポジウム、東京、12 月 8 日-9 日 (2016) pp. 58-60

Y. Kansha, M. Ishizuka, H. Mizuno, A. Tsutsumi: An Energy-Saving Carbon Dioxide Capture Using a Circulating Fluidized Bed, 16th International Conference on Sustainable Energy Technologies (SET2017), Jul. 17-20, Bologna, Italy (2017)

Y. Kansha: Energy-Saving Carbon Dioxide Separation Process Using Circulating Fluidized Bed, The 8th China-Japan Symposium on Chemical Engineering, Oct. 14-15, Beijing (2017)

Y. Kansha, M. Ishizuka, A. Tsutsumi: Development of an Energy-saving Carbon Dioxide Capture Process Using Circulating Fluidized Bed, 10th World Congress of Chemical Engineering (WCCE10), Oct. 1-5, Barcelona, Spain (2017) OC-42306

Y. Kansha, M. Ishizuka, A. Tsutsumi: Energy-Saving CO₂ Capture Process Using Fluidized Bed, 化学工学会第 83 年会, 3 月 15 日, 大阪 (2018)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

菅 蕉 寂 樹 (KANSHA, Yasuki)

東京大学 生産技術研究所 特任准教授

研究者番号 : 1 0 5 4 4 0 8 3