

# 論文の内容の要旨

論文題目

## An Innovative CO<sub>2</sub> Separation Process Based on Self-Heat Recuperation

(自己熱再生に基づいた革新的  
CO<sub>2</sub>分離プロセスに関する研究)

氏名

岸本 啓

### 第1章 緒論

非 OECD 諸国のエネルギー消費の増加により、化石資源の枯渇、地球温暖化問題は深刻さを増している。世界のエネルギー消費の 50%は産業部門で消費されており、産業部門の省エネルギー型プロセスを提案出来れば波及効果は非常に大きい。1970 年代より産業における省エネルギー手法として Pinch Technology の研究が進められている。これはヒートインテグレーションによって、プロセス内およびプロセス間の熱を有効利用する技術で、従来型プロセスのエネルギー消費を 20-30%低減できることが示されているが、加えた熱の多くは未だに捨てられており(図 1 a)、一層の省エネルギー化が課題であった。この課題を解決する技術として、近年、自己熱再生が提案されている(図 1b)。自己熱再生は産業プロセスなどの様々なプロセスに適用されており、従来型プロセスのエネルギー消費を 1/2-1/22 と大幅に低減できる可能性が報告されている。これまで自己熱再生の基本的な理論は従来の研究で示されている。また個々の産業プロセスへ導入した場合の省エネルギー効果についても示されてきた。しかし、他の省エネルギープロセス(e.g.ヒートポンプ)との理論的な比較はされていない。また自己熱再生を幅広いプロセスへ導入するために必要な設計方法論についても示されていない。そこで本研究では、これまでに提案されている自己熱再生の理論について整理し、新たに自己熱再生型プロセスの設計方法論を構築した。さらに具体的な産業プロセスとして CO<sub>2</sub>分離プロセスに、構築した設計方法論を適用し、自己熱再生化を行った。また、提案した自己熱再生型プロセスの産業への導入効果についても考察を行った。

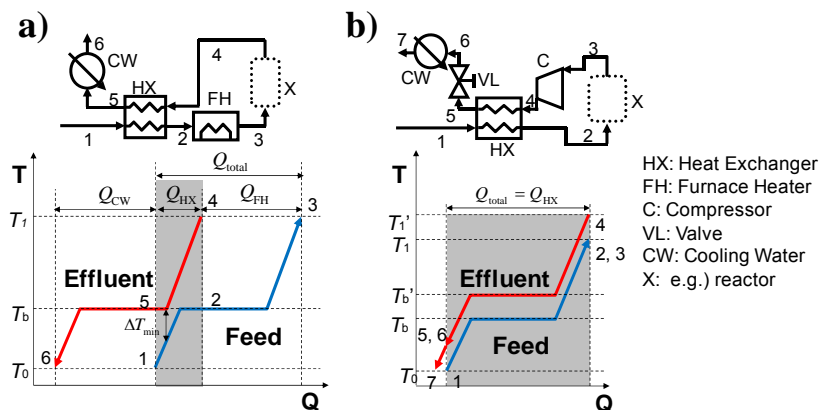


図 1 従来型と自己熱再生型加熱プロセスの比較

## 第2章 自己熱再生の理論

本章では、まず自己熱再生の理論について既報の理論を整理した。図1aに示すような従来型加熱プロセスと自己熱再生型プロセスのエネルギー消費の比較の研究はこれまでに報告されているが、ヒートポンプなどの従来型加熱プロセスとの比較はなされていない。そこで本研究ではヒートポンプなどの従来型加熱プロセスと自己熱再生とのエネルギー消費を数式を用いて比較し、自己熱再生がエネルギー消費を低減できる理由について明らかにした。さらに、反応熱をとまなうプロセスについても検討し、新たな反応熱輸送システムを提案した。

## 第3章 自己熱再生型プロセスの設計方法論

1) 自己熱再生型プロセスの設計方法論 自己熱再生の重要な理論として Pairing (ペアリング) と Modularity (モジュール化) が挙げられる。ペアリングは熱を循環利用するために、例えば潜熱は潜熱、顕熱は顕熱同士で対応付けることである。またモジュール化は各プロセスを機能(役割)ごとに分割し、その中で熱・物質をバランスさせることである。従来から化学工学の分野で言われている「単位操作」の考え方をを用いた省エネルギー化では、その単位操作を最小単位として省エネルギー化を考えているが、モジュール化では更に小さな単位で熱(エネルギー)・物質の入出および流れを考える。これはモジュール化を行う場合の重要な考え方であり、これによりペアリングを完全なものにできる。まとめ上げた理論を基にした自己熱再生型プロセスを設計するための方法論として、図2のような手順を示した。

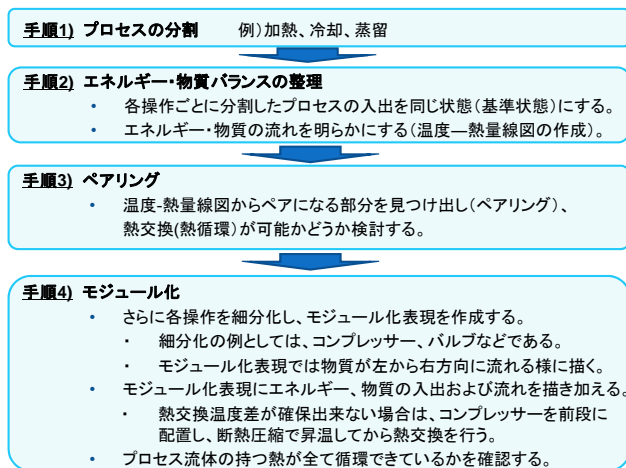


図2 自己熱再生型プロセスの設計方法論(手順)

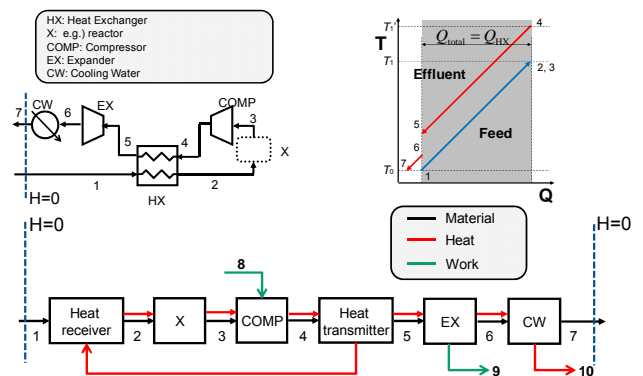


図3 モジュール化表現例(ガス加熱)

これらの手順に則ってプロセス設計を行うことで、自己熱再生型プロセスを構築できる。図3にモジュール化表現例としてガス加熱のプロセスを示す。ブロック線図を用いることで、エネルギー・物質のそれぞれの入出、プロセス内の流れが明らかとなり、ペアリングを完全なものに出来る。

2) 自己熱再生に基づいた分離プロセス 産業で幅広く用いられている分離プロセスに着目し、構築した自己熱再生の設計方法論を導入した。本研究では蒸留、化学吸収と化学吸着を対象とした。

蒸留分離 従来の蒸留塔ではリボイラーで加えた熱はすべて冷却水に捨てている。そこで予熱モジュールと蒸留モジュールを適用することで、大幅なエネルギー消費の低減を図ることができることを示した。(図4)

化学吸収 化学吸収では反応を伴うため、反応熱の輸送が必要になる。そこで新たに反応熱輸送システムを導入した。その結果、大幅なエネルギー消費の低減を図れることを示した。

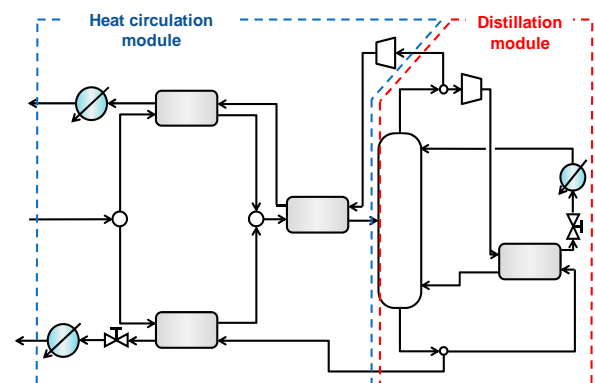


図4 蒸留分離における予熱、蒸留モジュールの例

化学吸着 化学吸着においても反応を伴うため、化学吸収と同様に RHT を導入することでエネルギー消費の低減が可能になる。さらに PSA の場合には圧力エネルギーの回収がエネルギー消費の低減を図る上で重要であることを示した。

#### 第 4 章 CO<sub>2</sub> 分離プロセス

発電プロセスからの CO<sub>2</sub> 排出量は世界 CO<sub>2</sub> 排出の約 40% を占める。また CCS (Carbon Capture and Storage) で消費される全エネルギー消費量のうち、CO<sub>2</sub> 分離のエネルギー消費量は 70% 以上を占めている。そこで本章では、発電所からの CO<sub>2</sub> 排出量を低減することを目的に、次に示す 3 つの CO<sub>2</sub> 分離方式の自己熱再生化について検討を行った。

Post-combustion 燃焼後に CO<sub>2</sub> を分離する Post-combustion において、CO<sub>2</sub> 分離に化学吸収プロセス (図 5) を用いた場合、その消費エネルギーは約 4.1 GJ/t-CO<sub>2</sub> となることが報告されている。吸収分離では、図 6 に示すような自己熱再生化によって顕熱、潜熱ならびに反応熱も循環利用することで従来の Post-combustion プロセスのエネルギー消費量を約 1/3 まで低減することができ、大幅な省エネルギー化が図れることが分かった。

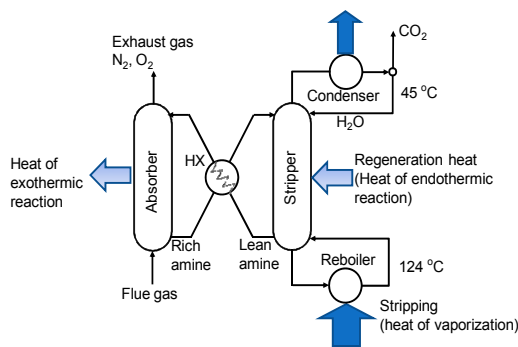


図 5 従来型吸収分離プロセス

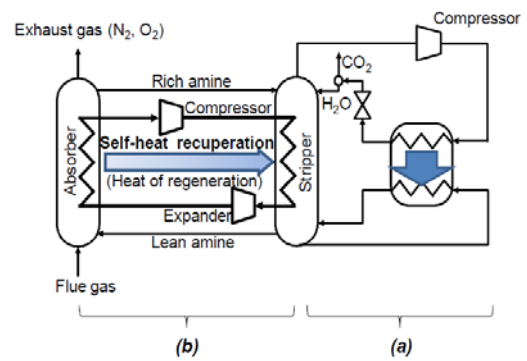


図 6 自己熱再生型吸収分離プロセス

2) Pre-combustion 図 7 に示すように、燃焼前に CO<sub>2</sub> を分離回収する Pre-combustion は Post-combustion と異なり CO の水蒸気改質を目的とした CO シフト反応器が導入されるが、エネルギー消費量は CO<sub>2</sub> 吸収分離装置の合計で、熱回収を考慮しても 6.0 GJ/t-CO<sub>2</sub> と大きいことが課題であった。そこで各プロセスに自己熱再生を適用することで、CO シフト反応器と CO<sub>2</sub> 吸収分離装置の合計で 1.9 GJ/t-CO<sub>2</sub> 程度と、約 1/3 までエネルギー消費が低減できることを明らかにした。

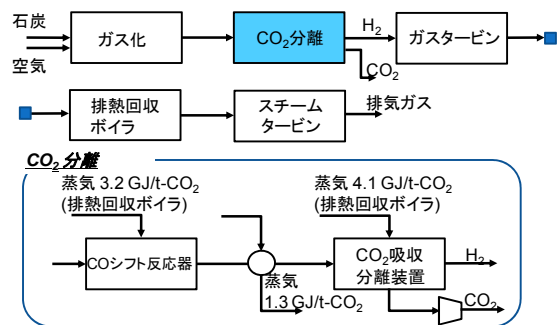


図 7 Pre-combustion 概略図

3) Oxy-combustion Oxy-combustion では酸素燃焼を行うため、空気中の酸素を取り出す酸素製造装置が必要となる。しかし高純度の酸素を作り出すことが可能な深冷分離装置は、酸素燃焼による発電効率を約 10% 近くまで低下させることが報告されている。そこで本章では 2 種類の酸素製造装置の自己熱再生化について検討を行った。

深冷分離 深冷分離装置は高純度の酸素を製造できるが、エネルギー消費量が非常に大きいことが課題であった。従来型プロセスではヒートインテグレーションがなされていたが、十分に熱のペアリングがなされていなかった。

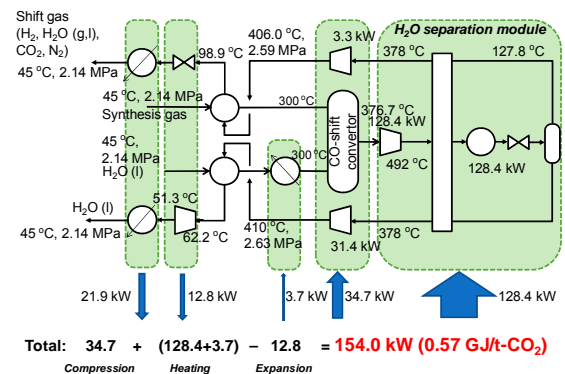


図 8 自己熱再生型 CO シフト反応器

そこで本研究では、従来型深冷分離プロセスに自己熱再生を適用することで、従来型深冷分離プロセスのエ

エネルギー消費を  $574.2 \text{ kWh/kNm}^3\text{-O}_2$  から  $366.1 \text{ kWh/kNm}^3\text{-O}_2$  と、約 36%低減できることを明らかにした。(図 9)

**回転式 PSA (Pressure Swing Adsorption)** 回転式 PSA プロセスは低純度酸素を低動力で、さらに通常の切替式 PSA 装置よりも設置面積を低減できる可能性がある。そこでまず PSA 数学モデルを構築し、回転式 PSA システムの設計指針を明らかにした。さらに回転式 PSA プロセスの自己熱再生化を行うことで、更なるエネルギー消費の低減が見込めることについても示した。

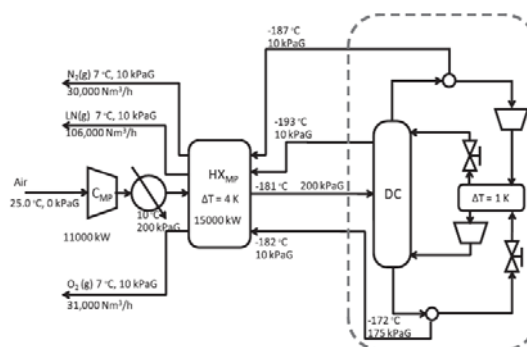


図 9 自己熱再生型深冷分離プロセス

## 第 5 章 さらに省エネルギー化

深冷分離などの蒸留塔について、省エネルギー型蒸留塔(Heat Integrated Distillation Column, HiDiC)を適用することで、さらなる省エネルギー化が図れると考えられる。

HiDiC は従来の蒸留塔と比べ、大幅な省エネルギー化を図ることが可能であると報告されている。HiDiC の蒸留塔の中では潜熱回収が行われているが、蒸留塔へ流入する流体の予熱部については、通常の熱回収を行っているのみで、熱は全て循環利用されていなかった。そこで HiDiC の自己熱再生化を行った。その結果、自己熱再生型 HiDiC は従来型 HiDiC に比べ 35%以上の省エネルギー化が可能となることを明らかにした(図 10)。

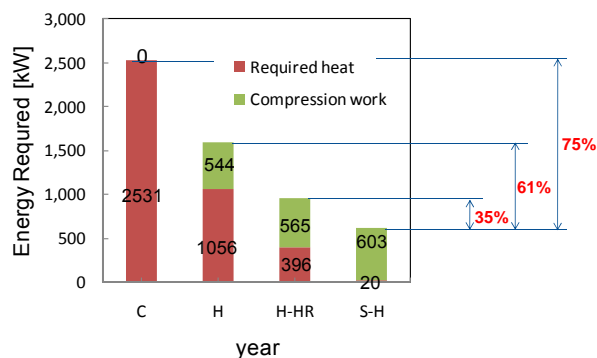


図 10 エネルギー消費量の比較 (C: the conventional distillation process, H: the HiDiC process, H-HR: the HiDiC with feed heat recovery, S-H: the HiDiC based on self-heat recuperation).

## 第 6 章 考察

本研究では、新たに構築した自己熱再生型プロセスの設計方法論を  $\text{CO}_2$  分離プロセスに適用し、大幅な省エネルギー化が図れることを明らかにした。そこで、提案した自己熱再生型分離プロセスを 2020 年における産業部門に導入した場合のエネルギー消費および  $\text{CO}_2$  削減効果について試算した。その結果、エネルギーおよび  $\text{CO}_2$  の削減効果は年間およそ 8.5 EJ および  $0.31 \text{ Gt-CO}_2$  であった。これは日本の 2007 年の一次エネルギー消費量の 35%、 $\text{CO}_2$  については約 25%にも達する。

さらに一例として、自己熱再生型深冷分離装置および自己熱再生型  $\text{CO}_2$  分離装置を製鉄所に適用することで、製鉄所で発生する副生ガスの消費量が低減できることについて述べ、その副生ガスを産業間での相互融通、エネルギーおよび物質の併産 (CO-production) に利用し得る可能性について示した。

## 第 7 章 総括

本章では全ての章の総括を行い、新たに構築した自己熱再生型プロセスの設計方法論を  $\text{CO}_2$  分離プロセスに適用し、大幅な省エネルギー化が図れることを結論づけた。