

研究論文

カルド型ポリイミド膜を用いた膜分離法
CO₂分離回収・液化システムの評価Evaluation of CO₂ Separation and Liquefaction System Using Cardo Polymer Membrane森 本 慎一郎*・風 間 伸 吾**・手 塚 哲 央***・吉 川 榮 和***
Shinichirou Morimoto Shingo Kazama Tetsuo Tezuka Hidekazu Yoshikawa

(原稿受付日2005年9月14日, 受理日2006年2月8日)

Abstract

For the purpose of mitigating carbon dioxide (CO₂) emissions, reducing cost for CO₂ separation and liquefaction is significant in order to develop carbon sequestration technologies for both geological and oceanic. This paper aims at the technological/economical analysis and feasibility study of CO₂ membrane separation and liquefaction system by proposing new CO₂ separation process using cardo polymer membrane. System optimization for pressure ratio and distillation temperature, top tray CO₂ concentration has done for the purpose of reducing CO₂ separation and liquefaction cost, comparing with conventional CO₂ separation process. Furthermore, economic effect by applying proposed CO₂ separation process into different type of CO₂ emission source is evaluated by developing CO₂ membrane separation analysis program and combined it with general-purpose process simulator PRO II /Provision. The CO₂ separation and liquefaction cost of proposed CO₂ separation process is estimated to be lower than those of conventional CO₂ separation process, therefore the CO₂ separation process using cardo polymer membrane can be assumed to be feasible in near future for carbon mitigation.

1. 序論

近年, エネルギー消費に伴うCO₂の大気中への大量放出が大きな環境問題となっており, CO₂を削減するため各国では様々な技術開発が行われている. CO₂削減に有効な対策の一つとして石炭火力発電所などのCO₂固定発生源からCO₂を分離回収し, 原油増進回収法 (Enhanced oil recovery) に利用する方法が現在, 米国で実用化されており既に年間4,300万トンものCO₂が地中に圧入されている¹⁾. またCO₂の海洋隔離²⁾や帯水層貯留³⁾などの方法が開発されており, 世界の隔離ポテンシャルは深海底貯留隔離で5,200~7,400万Gt-CO₂, 帯水層地中貯留で320~10,000Gt-CO₂と推定されていることから⁴⁾, これらの方法は現在CO₂削減のための有効な対策として注目されている. しかし, CO₂を分離回収しパイプラインで100km輸送して地中貯留するコストの約70%以上はCO₂分離回収に要するコストが占める⁵⁾. そのためCO₂の貯留・隔離を実用化させるためには, CO₂分離回収コストの大幅な低減が望まれる.

現在, 燃焼排ガスからのCO₂分離回収技術としては, 既に実用化されているアミン化学吸収法があり, その他にPSA

(Pressure Swing Adsorption) 法や膜分離法などがあげられる⁶⁾. この中で膜分離法は, CO₂分離回収プロセスのみでCO₂濃縮度の高いガスを得る場合には真空ポンプの動力負荷が急激に高くなり, 多大なエネルギーが必要となるため, 他のCO₂分離回収技術と比較して経済的に不利となる. しかし膜分離法は, 液化と組み合わせたシステムの最適化や排ガス条件について検討することでアミン化学吸収法よりも更にコスト低減できる可能性があるため, これらの検討はCO₂削減を図る上で大きな意義がある.

そこで本研究では既存研究の中で取り上げられているCO₂分離回収・液化システム (CO₂を分離回収・液化した後, 輸送し, 貯留するシステム⁷⁾) について, 最もコスト的にもエネルギー的にも負担が大きいCO₂分離回収プロセスについて, 分離性能の高いカルド型ポリイミド膜を用いることでエネルギー負担を大幅に液化プロセスに移行することを可能にした新しいシステムを提案し, システム最適化や排ガス条件の検討を行うことによって既存システムよりもCO₂分離回収・液化コストの低減が達成できることを示す. 本研究では, CO₂分離回収プロセスにおける膜分離工程の物質収支, 膜面積を忠実にシミュレーションすることのできる膜分離プロセス解析プログラムを作成し, それを汎用プロセスシミュレータに組み込むことによりCO₂分離回収・液化システムのプロセス設計及びシステム最適化を可能にした. また排ガス中CO₂濃度の差によるCO₂分離回収・液化コスト低減効果について評価するため, 評価対象排ガスとし

* (財)地球環境産業技術研究機構 化学研究グループ 研究員

** 〃 〃 〃 主任研究員

〒619-0292 京都府相楽郡木津町木津川台9-2

*** 京都大学大学院エネルギー科学研究科教授

〒606-8501 京都府京都市左京区吉田本町

て石炭火力発電所および鉄鋼プラントからの排ガスを対象に膜分離法CO₂分離回収・液化システムの適用を想定する。CO₂分離回収・液化システムにおける、CO₂分離回収プロセスについて、カルド型ポリイミド膜を用いた新しいシステムを提案し、プロセス最適化及び排ガス条件について検討することで、CO₂分離回収・液化コストの低減効果を評価した研究は過去に例がない。

2. 膜分離法CO₂分離回収・液化システムの概要とプロセス設計

以下に膜分離法CO₂分離回収・液化システムの概要、及びそのプロセス設計の内容について述べる。

2.1 膜分離法CO₂分離回収・液化システムの概要

膜分離法とは分離膜における各気体の透過速度の差を利用して特定の気体を選択的に分離する分離方法である⁵⁾。膜分離法によって常圧の排ガスからCO₂分離回収を行う場合、膜供給側に加圧のみを行う方式に対して、膜供給側をパワーで加圧し、さらに膜透過側を真空ポンプで減圧する方式の方がエネルギー的に有利となることから⁸⁾、本研究では後者の方式を想定する。また、本研究で対象とする排ガス条件において有機膜、無機膜および液膜などの分離膜素材の中で現在、最も高い分離性能を有するカルド型ポリイミド膜⁹⁾(有機膜)を分離膜として想定する。

通常、膜分離法では膜透過側を減圧するための真空ポンプ動力費がCO₂分離回収・液化コストの約60%を占める¹⁰⁾。ここで膜分離法により排ガス中のCO₂を50~80%まで濃縮した後、液化することにより99.9%まで濃縮するシステムを想定し、その動力負荷のバランスを最適化することで真空ポンプ動力の負荷を液化動力で補うことが可能となり、CO₂分離回収・液化コストはアミン化学吸収法やPSA法と比較して大きく低減することが期待できる。さらに、膜分離法におけるCO₂分離回収・液化コストは他のCO₂分離回収技術と比較して排ガス中のCO₂濃度に大きく依存することから、鉄鋼プラント排ガスなどCO₂濃度が高い排ガスに適用すれば大幅なCO₂分離回収・液化コストの低減が期待できる。以上より本研究ではCO₂分離回収・液化コストに最も大きく影響を与えと考えられるCO₂分離回収プロセスと液化プロセスの動力負荷バランス、および排ガス条件に注目し、CO₂分離回収・液化コストの低減効果を評価する。

2.2 膜分離法CO₂分離回収・液化システムのプロセス設計

ここでは膜分離法を適用したCO₂分離回収・液化システムについて、膜分離工程におけるプロセス計算の概要および全体システムのプロセス設計の概要を述べる。

(1) 膜分離工程プロセス計算の概要

本研究では膜分離部のプロセス計算を行うための膜分離プロセス解析プログラムを作成した。以下では、作成した

膜分離プロセス解析プログラム(以下、本プログラムと呼ぶ)の概要および、膜分離工程における物質収支の計算プロセスについて述べる。

本プログラムは膜の供給側と透過側の圧力差から生じる膜透過の推進力を利用してCO₂、N₂、H₂O、O₂の4成分混合ガスから膜分離法によってCO₂を分離回収するプロセスを忠実にモデル化する。本プログラムは分離膜性能及び膜分離条件を入力し、4成分混合ガスからCO₂を分離回収した場合の膜面積、さらに分離膜モジュール内を段数で分割した場合の各段数における物質収支(供給側流量、供給側組成、透過側流量、透過側組成)を計算する。本プログラムの分離膜モジュール内計算プロセスを図1に示す。

本プログラムでは、分離膜モジュールの単位面積あたりのガス透過量および分離膜モジュール内の物質収支に関する式は既存の化学工学理論式を用い、またCO₂回収率に関する式を提案し、これを本プログラムの収束条件とする。またモジュール内の格段は完全混合流れであるとする。以下では本プログラムのガス透過量、物質収支およびCO₂回収率に関する式について述べる。

図1において成分*i*、モジュール長さ方向における段数*j*(段数*j*の最大値は*n*)の供給ガス濃度(濃度はモル分率を意味する)を $X_{i,j}(-)$ 、透過ガス濃度を $Y_{i,j}(-)$ 、供給ガス圧力を $P_{hj}(\text{MPa})$ 、透過ガス圧力を $P_{lj}(\text{MPa})$ 、単位面積 $dA(\text{m}^2)$ あたりの透過速度を $q_i(\text{Nm}^3/\text{m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{MPa})$ としたとき(透過速度は段数によらず一定)、ガス透過量(透過流速) $Q_{i,j}(\text{Nm}^3/\text{h})$ は、次の透過速度式(1)で表される¹¹⁾。

$$Q_{i,j} = q_i \cdot dA (P_{hj} \cdot X_{i,j} - P_{lj} \cdot Y_{i,j}) \quad \text{.....式(1)}$$

また段数*j*における全透過量 $Q_j(\text{Nm}^3/\text{h})$ は成分*i*の透過量 $Q_{i,j}$ について、これら4成分の和として式(2)で表す。

$$Q_j = \sum_{i=1}^4 Q_{i,j} \quad \text{.....式(2)}$$

ここで供給ガス流量を $\lambda_j(\text{Nm}^3/\text{h})$ としたとき段数*j+1*の供給ガス流量 λ_{j+1} 、成分*i*の濃度 $X_{i,j+1}$ はそれぞれ次の式(3)、(4)で表す。

$$\lambda_{j+1} = \lambda_j - Q_j \quad \text{.....式(3)}$$

$$X_{i,j+1} = \frac{\lambda_j \cdot X_{i,j} - Q_{i,j}}{\lambda_{j+1}} \quad \text{.....式(4)}$$

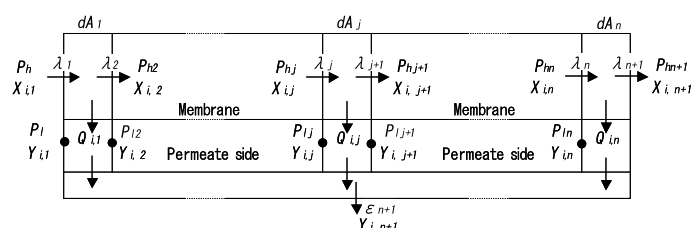


図1 分離膜モジュール内の計算プロセス

したがって膜を透過しなかった非透過ガス流量および非透過ガス濃度は段数 n における供給ガス流量 λ_n および供給ガス濃度 $X_{i,n}$ で表すことができる。

また本研究では膜分離プロセスのフローモデルとして十字流型モデルを想定する。十字流型モデルとは、モジュール長さ方向に対して垂直に透過ガスを回収するモデル方式である。十字流型モデルでは、成分 i 、段数 j の透過ガス濃度 $Y_{i,j}$ を次の式(5)で表す。

$$Y_{i,j} = \frac{Q_{i,j}}{Q_j} \dots\dots\dots \text{式(5)}$$

十字流型モデルでは透過ガス濃度の計算は全ての段数 j について式(5)を使用する。さらに十字流型モデルでは透過ガス流量 ε_j (Nm³/h)と式(2)で計算される透過量 Q_j は同じ値となる。一方、分離膜を透過する透過ガスの流量は ε_{n+1} として、また成分 i の濃度は $Y_{i,n+1}$ として、それぞれ次の式(6)、(7)で表す。

$$\varepsilon_{n+1} = \lambda_1 - \lambda_n \dots\dots\dots \text{式(6)}$$

$$Y_{i,n+1} = \frac{\lambda_1 \cdot X_{i,1} - \lambda_n \cdot X_{i,n}}{\varepsilon_{n+1}} \dots\dots\dots \text{式(7)}$$

本プログラムで提案した収束条件は入力変数として設定するCO₂回収率 θ と供給ガス流量 λ_1 、供給ガスCO₂濃度 $X_{2,1}$ 、透過ガス流量 ε_{n+1} 、透過ガスCO₂濃度 $Y_{2,1}$ から計算されるCO₂回収率が次の式(8)を満たすことによって成立する。

$$\theta = \frac{\varepsilon_{n+1} \cdot Y_{2,1}}{\lambda_1 \cdot X_{2,1}} \dots\dots\dots \text{式(8)}$$

膜面積 A は式(8)を満たす段数 n と単位膜面積 dA を積算することによって式(9)で表す。

$$A = dA \cdot n \dots\dots\dots \text{式(9)}$$

作成した本プログラムの計算結果と、膜分離実験による計算結果の比較を行った結果、誤差3%以内で値が一致したため、本プログラムの妥当性を確認することが出来た。以上より本プログラムを汎用プロセスシミュレータに組み込むことにより、膜分離法CO₂分離回収・液化システムの設計およびCO₂分離回収プロセスと液化プロセスの動力負荷バランスの最適設計を行う。

(2) 膜分離法CO₂分離回収・液化システムの概要

本プログラムを組み込む汎用プロセスシミュレータとして「PRO II/Provision」^[12)]を使用する。「PRO II/Provision」はシステムを構成する各機器の構成や運用条件を設定することによりシステム全体の物質収支、所要エネルギー、用量を計算することができる。膜分離工程については本プログラムにおける供給ガス流量 λ_1 、供給ガスモル分率 $X_{i,1}$ 、透過ガス流量 ε_{n+1} 、透過ガスモル分率 $Y_{i,n+1}$ 、供給ガス圧力 $P_{h,j}$ および透過ガス圧力 $P_{l,j}$ を汎用プロセスシミュレータで

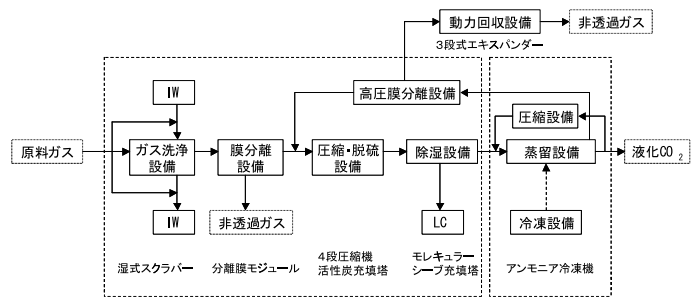


図2 膜分離法CO₂分離回収・液化システムの全体システムブロックフロー

計算する際のパラメータの一部として利用する。

膜分離法CO₂分離回収・液化システムの全体システムブロックフローを図2に示す。

プロセスの各工程における詳細は以下の通りである。

(2.1) 前処理工程

CO₂を含む排ガス（原料ガス）はブロワーによりスクラバー下部へ圧送され、苛性ソーダを添加した循環液との接触により、ガス中の硫酸化物(SO_x)とダスト分を除去する。スクラバーの上部では、循環冷却水によって35℃まで冷却・除湿する。スクラバーを出たガスは、ヒーターにより膜フィードガス温度(40℃)まで昇温し、膜分離工程に供給する。

(2.2) 膜分離工程

膜分離工程におけるプロセス計算の詳細については2.2で述べた。膜分離装置では中空糸膜の内側にガスを供給し、真空ポンプによって膜透過側を減圧に保持することにより、CO₂等の成分を選択的に膜に透過させ、濃縮されたCO₂を透過側に得る。膜透過側の濃縮CO₂ガスは圧縮・除湿工程に供給する。

(2.3) 圧縮・除湿工程

圧縮工程での昇圧条件は、下流の精製工程の運転条件によって決まる。詳細は次節で述べるが精製塔の塔頂からリサイクルされるガス中のCO₂濃度を低くしようとすると、冷凍機の冷媒温度を下げるかまたはプロセスガスの圧力を上げることが要求される。冷凍機の冷媒温度に関してはCO₂の凝固点が一56℃であることから一50℃程度の下限条件がある。圧力に関しても、あまり高圧にすると機器コストの点からも不利となる。ほぼ大気圧から15.0~40.0kg/cm²Aまでの圧縮となるため、圧縮段階としては3及び4段とする。

除湿工程では、固定床のモレキュラーシーブによる吸着除去方式により脱湿を行う。2槽方式として、1槽の再生は精製工程からのリサイクルガスを使用して実施する。

(2.4) 液化精製工程

脱湿後のプロセスガスは精製塔の塔頂からリサイクルする低温ガスおよび冷媒により冷却した後、精製塔へ供給する。精製塔では塔底で99.9mol%程度までCO₂を濃縮し、塔

頂は冷媒による凝縮器で部分凝縮させ、液は還流液として精製塔へ戻し、ガスは圧縮系にリサイクルされる。精製塔からの塔底液はフラッシュ槽にて、 $10\text{kg}/\text{cm}^2\text{A}$ まで減圧し、 -40°C まで冷却された後製品タンクへと送る。フラッシュすることにより、液中の CO_2 は所定の濃度(99.90wt%)以上まで達する。フラッシュ槽で発生する CO_2 リッチガスは CO_2 圧縮機で昇圧された後、精製塔供給ガスへとリサイクルする。

(2.5) 高压分離膜

精製塔の塔頂リサイクルガスを冷熱回収後、高压分離膜によって CO_2 を回収し、高濃度 CO_2 ガスとして圧縮系へリサイクルされる。高压分離膜の非透過側からのガスは、高压であり3段のエキスパンダーで動力および冷熱回収をする。減圧後の非透過ガスは膜分離工程へのリサイクルはせずに大気放出する。

3. CO_2 分離回収・液化エネルギー・ CO_2 分離回収・液化コストの評価に関する前提条件

膜分離法 CO_2 分離回収・液化システムの CO_2 分離回収・液化エネルギーおよび CO_2 分離回収・液化コストを評価するにあたり、本研究で使用する前提条件は以下の通りである。

3.1 排ガス条件

本研究では膜分離法 CO_2 分離回収・液化システムを適用する排ガス源として CO_2 濃度の異なる石炭火力発電所排ガス(以下、石炭火力排ガスと呼ぶ)および鉄鋼プラント排ガス(以下、鉄鋼排ガスと呼ぶ)を想定する。鉄鋼排ガスについてはコークス炉排ガス、熱風炉排ガス、LDG排ガスの全てを集める事を想定する。

表1に石炭火力排ガスおよび鉄鋼排ガスに関する排ガス条件を示す。

3.2 CO_2 分離膜の選定

本研究において想定する膜分離法 CO_2 分離回収・液化システムでは CO_2 分離膜の中で最も高い分離性能を有する(財地球環境産業技術研究機構(以下、RITEと呼ぶ)が開発されたカルド型ポリイミド膜⁹⁾を CO_2 分離膜として適用することを想定する。

CO_2 分離膜の分離性能は CO_2 透過速度と CO_2/N_2 分離係数、 $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$ 分離係数および CO_2/O_2 分離係数の4つの指標を用

いて表すことができる。RITEで開発されたカルド型ポリイミド膜は CO_2 透過速度 $5.0 \times 10^{-4} \text{cm}^3/\text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg}$ 、 CO_2/N_2 分離係数35、 $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$ 分離係数0.03、 CO_2/O_2 分離係数7であり¹⁴⁾、本研究では以上の値を用いて式(1)の各成分の透過速度 q_i を求めて CO_2 分離膜の分離性能として使用する。

3.3 システム運転条件

膜分離法 CO_2 分離回収・液化システムにおける各工程の運転条件については、先行研究¹⁴⁾の中で既に最適条件が求まっているため、本研究の中では固定条件として設定するものと、本研究で新たに最適条件を求めるものとに分ける。ここでは、それぞれの条件についての詳細を述べる。

(1) 固定条件として設定するシステム運転条件

(1.1) 膜分離供給ガス温度

膜分離工程に排ガスを供給する温度については、本研究で分離膜として想定するカルド型ポリイミド膜が最も高い分離性能を示す温度とし、先行研究の結果より本研究では 40°C とする。

(1.2) ブロワー圧力・スクラバー除湿温度

40°C で膜分離を行う際、膜透過側での水の結露による分離膜の劣化を防ぐため予め排ガスをスクラバーで除湿する。この時、ブロワー圧力を上げるとブロワーの動力負荷が増加するが、スクラバー除湿温度が上がるため、スクラバーにおける循環水ポンプの動力が低減する。先行研究においてブロワー圧力とスクラバー除湿温度の最適化を行った結果より、スクラバー除湿温度は両排ガス条件について 35°C 、ブロワー圧力は下記の値を用いる。

- ・石炭火力排ガス : $1.104 \text{kg}/\text{cm}^2$
- ・鉄鋼排ガス : $1.107 \text{kg}/\text{cm}^2$

(1.3) CO_2 回収率

CO_2 回収率が低いとブロワー動力等 CO_2 分離回収量に依存しない動力が影響し単位 CO_2 回収量当たりのエネルギーは高くなるため CO_2 分離回収・液化コストは増加する。また CO_2 回収率が高いと CO_2 分離回収プロセスにおける真空ポンプ動力費が急激に増加し、 CO_2 分離回収・液化コストは同様に増加する。そのため、 CO_2 回収率には最適値が存在し、その値は先行研究の結果から60%と求まっているため、本研究では CO_2 回収率はこの値を固定条件として用いる。

(2) 最適化により求めるシステム運転条件

本研究では CO_2 分離回収プロセスと液化プロセスの動力負荷のバランス(これは膜分離工程における圧力比で表すことができるため、以降圧力比と呼ぶ)、および液化精製工程における精製塔圧力、精製塔塔頂温度および精製塔塔頂ガス CO_2 濃度を CO_2 分離回収・液化エネルギーに最も影響のある運転条件として新たに最適化を行う。液化精製工程の最適運転条件は、圧力比に依存する。そのため、本研究ではまず圧力比の各値について液化精製工程の最適運転条

表1 排ガス条件¹³⁾

		石炭火力排ガス	鉄鋼排ガス
流量 (Nm^3/h)		2,838,000	780,000
温度 ($^\circ\text{C}$)		48.6	250
組成	CO_2 (%)	13.2	26.8
	N_2 (%)	71.7	68.4
	H_2O (%)	11.4	3.9
	O_2 (%)	3.7	0.9

件を逐次的に求め、その結果から圧力比の最適運転条件を求めることによってシステム全体の最適化を行う。

以下では、圧力比および液化精製工程の最適運転条件を求めた結果について示す。

(2.1) 膜分離工程における圧力比

CO₂分離回収プロセスと液化プロセスの動力負荷のバランスは膜分離工程におけるCO₂濃縮度に依存し、これは膜分離工程における供給側圧力と透過側圧力の比（圧力比）によって操作される。そのため、ここではCO₂回収率60%における圧力比についてCO₂分離回収・液化エネルギー最小となる最適値を求める。図3に石炭火力排ガスおよび鉄鋼排ガスからCO₂分離回収・液化を行った場合の圧力比の最適値を求めた結果を示す。

石炭火力排ガス、鉄鋼排ガスのいずれにおいても圧力比が低い場合、真空ポンプ動力が低減できるが、膜分離によるCO₂濃縮度が低くなることにより液化動力の増加が真空ポンプ動力の低減を上回る。そのためCO₂分離回収・液化エネルギーは上昇する。また圧力比が高い場合は真空ポンプ動力の著しい増加により、CO₂分離回収・液化エネルギーは上昇する。

図3から石炭火力排ガスに適用した場合、圧力比0.13でCO₂分離回収・液化エネルギーは最小となり、この時のCO₂濃縮度は59%となる。また鉄鋼排ガスを適用した場合は圧力比0.21でCO₂分離回収・液化エネルギーは最小となり、この時のCO₂濃縮度は78%となる。そこで圧力比に関しては上記の値を用いてCO₂分離回収・液化エネルギーおよびCO₂分離回収・液化コストの評価を行う。

(2.2) 圧縮・液化精製工程における精製塔圧力、精製塔塔頂温度および精製塔塔頂ガスCO₂濃度

圧縮工程、精製工程を含めた圧縮・液化精製工程では、膜分離工程から出てくる濃縮CO₂ガスを効率よく液化させることが要求される。液化精製工程における精製塔圧力、精製塔塔頂温度および精製塔塔頂からのリサイクルガス中のCO₂濃度については、この3つの因子のうち2つが定まると残りの1つの因子は決まってしまう。これら精製塔圧

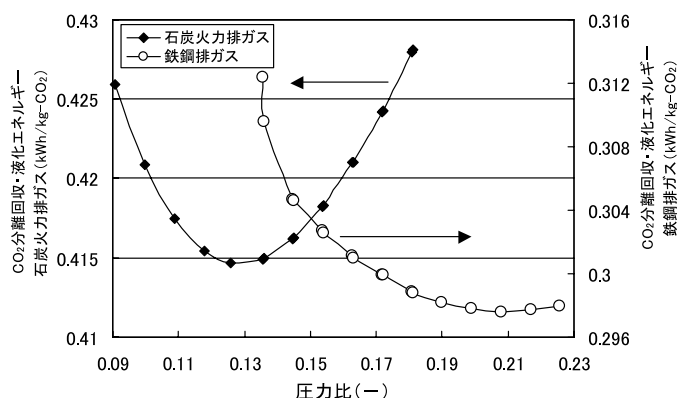


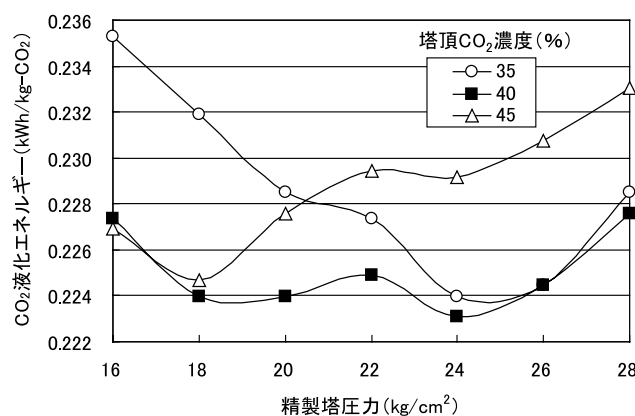
図3 圧力比とCO₂分離回収・液化エネルギー

力、精製塔塔頂温度および精製塔塔頂からのリサイクルガス中のCO₂濃度にはCO₂液化エネルギーが最小となる最適値が存在する。本研究では石炭火力排ガスおよび鉄鋼排ガスからCO₂分離回収・液化を行った場合のこれら3つの因子について最適値を求める。CO₂液化エネルギーのみに対する最適値についての結果を図4(a)（石炭火力排ガスに適用した結果）および(b)（鉄鋼排ガスに適用した結果）に示す。

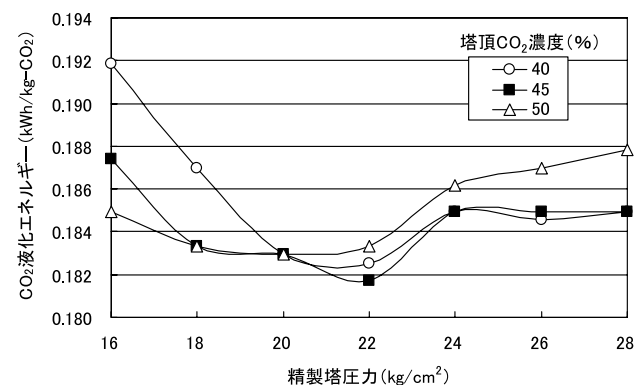
圧縮行程と精製工程のそれぞれの必要動力は、圧縮行程では圧力が低いほど必要動力は低く、逆に精製工程では圧縮行程での圧力が高いほど液化温度が高くなり、冷凍機動力の負荷が少なくてすむため必要動力は少なくなる。図4(a)および(b)から精製塔圧力、塔頂CO₂濃度についてCO₂液化エネルギー最小となる最適値を求めた結果、石炭火力排ガスに膜分離法CO₂分離回収・液化システムを適用した場合は精製塔圧力24kg/cm²、精製塔塔頂ガスCO₂濃度40%で、また鉄鋼排ガスに適用した場合は精製塔圧力22kg/cm²、精製塔塔頂ガスCO₂濃度45%でCO₂液化エネルギーは最小となることが分かった。したがって上記の値を用いてCO₂分離回収・液化エネルギーおよびCO₂分離回収・液化コストの評価を行う。

3.4 CO₂分離回収・液化コストの評価に関する前提条件

膜分離法CO₂分離回収・液化システムの物質収支、CO₂



(a) 石炭火力排ガスのケース



(b) 鉄鋼排ガスのケース

図4 精製塔圧力、精製塔塔頂温度および精製塔塔頂ガスCO₂濃度とCO₂液化エネルギー

表2 運用費、膜費および人件費に関する前提条件

電力単価 ^{*1)}	9 円/kWh
スチーム単価 ^{*2)}	2,000円/t
工水単価 ^{*3)}	50 円/t
膜費 ^{*4)}	4,000円/m ²
人件費	6百万円/(人・年)

*1) LNG-GTCC⁷⁾ における発電を想定して電力単価を計算*2) 3.0kg/cm²G飽和蒸気を想定*3) 参考文献¹⁵⁾ を参照*4) カルド型ポリイミド膜¹⁴⁾ を想定

分離回収・液化エネルギーからCO₂分離回収・液化コストを算出するにあたって以下の前提条件を用いる。

(1) 運用費、膜費および人件費に関する前提条件

CO₂分離回収・液化コストの評価にあたって運用費、膜費および人件費に関する前提条件を表2に示す。膜費は建設費として使用するが、耐用年数10年で交換するものとする。

(2) 建設費に関する前提条件

CO₂分離回収・液化コストの評価にあたって建設費に関してはプラントの耐用年数15年で年経費率を16%とし(膜に関する建設費のみ19%とする)、プラント運転時間は8,000時間/年として建設費年経費を算出する。

4. CO₂分離回収・液化エネルギーおよびCO₂分離回収・液化コストの評価結果

前節で記述した前提条件に基づき、膜分離法CO₂分離回収・液化システムのCO₂分離回収・液化エネルギーおよびCO₂分離回収・液化コストの評価を行う。

4.1 CO₂分離回収・液化エネルギーに関する評価結果

表3に膜分離法CO₂分離回収・液化システムを石炭火力排ガスおよび鉄鋼排ガスに適用した場合のCO₂分離回収・液化エネルギーに関する評価結果を示す。

ここで膜分離法CO₂分離回収・液化システムを石炭火力排ガスに適用した場合のCO₂分離回収・液化エネルギーが0.414kWh/kg-CO₂となるのに比べて、鉄鋼排ガスに適用した場合は0.298kWh/kg-CO₂となり、CO₂濃度の高い排ガスに膜分離法CO₂分離回収・液化システムを適用するとCO₂分離回収・液化エネルギーは大きく低減できることが分かる。これは、3.3(2)で示した膜分離工程における圧力比が大きく関与する。

表3 CO₂分離回収・液化エネルギーに関する評価結果

	石炭火力排ガス		鉄鋼排ガス	
	kWh/kg-CO ₂	%	kWh/kg-CO ₂	%
ブロー動力	0.03	7.2	0.026	8.7
真空ポンプ動力	0.148	35.7	0.082	27.5
冷却水ポンプ動力	0.012	2.9	0.008	2.7
圧縮機動力	0.145	35	0.101	33.9
冷凍機動力	0.079	19	0.081	27.1
合計	0.414	100	0.298	100

また石炭火力排ガスに適用した場合のCO₂分離回収・液化エネルギーの中で、真空ポンプ動力は35.7%と最も大きな割合を占めた。鉄鋼排ガスなど、排ガス中のCO₂濃度が高い場合には、膜分離工程においてこの真空ポンプに大きな負荷をかけることなく、高いCO₂濃縮度のガスを得ることができる。したがってCO₂分離回収・液化エネルギーの中で最も大きな割合を占める真空ポンプ動力の低減がCO₂分離回収・液化エネルギーの低減につながる事が分かる。

4.2 CO₂分離回収・液化コストに関する評価結果

膜分離法CO₂分離回収・液化システムのCO₂回収量、膜面積、建設費に関する計算結果を表5に示す。これはシステムの機器構成から設備設計を想定して、設備建設費は機器費、現場材料費、工事費、エンジニアリング費、輸送費を積み上げたものである。

表3のCO₂分離回収・液化エネルギー、表4の建設費から膜分離法CO₂分離回収・液化システムを石炭火力排ガスおよび鉄鋼排ガスに適用した場合のCO₂分離回収・液化コストを求めた。評価結果を表5に示す。

ここで膜分離法CO₂分離回収・液化システムを石炭火力排ガスに適用した場合のCO₂分離回収・液化コストが7.13円/kg-CO₂であるのに比べて、鉄鋼排ガスに適用した場合は4.91円/kg-CO₂となり、排ガス中CO₂濃度が高い排ガスに適用するとCO₂分離回収・液化コストは2.22円/kg-CO₂低減される事が分かる。これは表3に示した排ガス中CO₂濃度の差によるCO₂分離回収・液化エネルギーの低減により、電力費が1.02円/kg-CO₂低減されることが原因となっている。また表4より排ガス中CO₂濃度が高い排ガスを適用すると単位CO₂回収量当たりの膜面積が低減されるため、分離膜モジュールに関する機器費、現場材料費、工事費が低減され、建設費は低減される。そのため、表5における建設費年経費は1.19円/kg-CO₂低減される。

以上から、膜分離法CO₂分離回収・液化システムは排ガ

表4 CO₂回収量、膜面積、建設費に関する計算結果^{14), 16)}

	単位	石炭火力排ガス	鉄鋼排ガス
CO ₂ 回収量	t/h	442	246
膜面積	m ²	4.00×10 ⁶	9.45×10 ⁵
CO ₂ 分離回収設備費	百万円/(t-CO ₂ /h)	110.2	58.9
CO ₂ 液化設備費	百万円/(t-CO ₂ /h)	48.5	44.3

表5 CO₂分離回収・液化コストに関する評価結果

	石炭火力排ガス		鉄鋼排ガス	
	円/kg-CO ₂	%	円/kg-CO ₂	%
電力費	3.73	52.3	2.71	55.2
スチーム費	0.03	0.4	0.02	0.4
工水費	0.04	0.6	0.04	0.8
人件費	0.02	0.3	0.02	0.4
建設費	3.31	46.4	2.12	43.2
合計	7.13	100	4.91	100

ス中CO₂濃度が高い排ガスに適用すると電力費と建設費の双方が低減できることから、CO₂分離回収・液化コストの大幅な低減が期待できる事が分かる。

アミン化学吸収法によってCO₂分離回収・液化を行った場合のCO₂分離回収・液化コストについて評価した結果、表2に示した前提条件を用いると石炭火力発電所排ガスに適用した場合に5.77円/kg-CO₂ (吸収液再生熱量720kcal/kg-CO₂¹⁷⁾, CO₂分離回収・液化エネルギー0.14kWh/kg-CO₂ (ここでは吸収液再生熱量を除いたブロー動力と液化動力の合計を意味する)¹⁸⁾, 建設費63.6×106円/(t-CO₂/h)¹⁸⁾と推定され、鉄鋼排ガスに適用すると5.05円/kg-CO₂ (吸収液再生熱量700kcal/kg-CO₂¹⁷⁾, CO₂分離回収・液化エネルギー0.14kWh/kg-CO₂¹⁸⁾, 建設費64.6×106円/(t-CO₂/h)¹⁸⁾と推定される。しかし本研究の結果では、鉄鋼排ガスに膜分離法を適用した場合に、アミン化学吸収法よりも0.14円/kg-CO₂低いコストでCO₂分離回収・液化が可能であることが分かる。

5. 結論

本研究では実用可能性の高いCO₂分離回収技術として注目を浴びている膜分離法について、膜分離プロセス解析プログラムを作成し、それを汎用プロセスシミュレータに組み込むことによりCO₂分離回収・液化システムのプロセス設計およびシステム最適化を行った。CO₂濃度の異なる2つの排ガスを対象に膜分離法CO₂分離回収・液化システムを適用した場合のCO₂分離回収・液化コストについて比較した結果、鉄鋼排ガスを適用した場合は4.91円/kg-CO₂と石炭火力排ガスに比べて2.22円/kg-CO₂のコスト低減が見込まれ、この値はアミン化学吸収法のそれよりも0.14円/kg-CO₂低い値となった。現在、常圧の燃焼排ガスからのCO₂分離回収について膜分離法を適用してCO₂分離回収コストを評価した研究報告例はないが、本研究の結果からカルド型ポリイミド膜による膜分離法は既存のCO₂分離回収技術に十分競合し得ることを定量的根拠のもとに示すことが出来た。

今後、CO₂の大幅な削減を目指す場合、様々な排ガス源を対象にCO₂分離回収・液化システムを設計する必要がある。その場合、排ガス条件によって最も有利となるCO₂分離回収方法を選定する必要がある。その際には選定したCO₂分離回収技術の特性を生かしたシステムのプロセス設計および最適化が必要となる。本研究から得られる結論は、幅広い排ガス源からのCO₂分離回収を想定する上で有益な知見を与えることが期待できる。

本研究はNEDO委託事業「二酸化炭素固定化・有効利用技術等対策事業 高濃度二酸化炭素発生源適応型分離回収実用化技術の開発」の一環として行われた。

参考文献

- 1) H.ハーゾック他；「日経サイエンス」, 2000年5月号, (2000), 72-79.
- 2) 大隅多加志；「地球環境2002-03」(財電力中央研究所編著, エネルギーフォーラム社2002年6月), 第4部第2章, 「地中貯留」, (2002).
- 3) 小出仁；「CO₂の地中貯留」, 環境管理, 34-8 (1998).
- 4) 新エネルギー・産業技術総合開発機構, (財地球産業文化研究所；平成16年度調査報告書：「地球環境国際連携推進事業地球温暖化防止対策国際合意形成調査研究」, (2005).
- 5) 乾智行監修；「CO₂固定化・隔離の最新技術」, (2000), 118, (株シーエムシー.
- 6) 川井利長編；「炭酸ガス回収技術」, (1991), (株NTS.
- 7) 新エネルギー・産業技術総合開発機構, (財エネルギー総合工学研究所；平成7年度調査報告書NEDO-GET-9507：「地球環境から見た総合的化石燃料サイクル分析評価手法の調査(Ⅲ)」, (1996).
- 8) Norifumi Matsumiya, Hiroshi Mano and Kenji Haraya ; "The Examination of CO₂ Recovery Process by Membrane Separation Method", Proceedings of 6th International Conference on Greenhouse Gas Technologies, (2002).
- 9) (財地球環境産業技術研究機構；平成11年度地球環境産業技術開発事業 新エネルギー・産業技術総合開発機構委託：「接触水素化反応利用二酸化炭素固定化・有効利用技術研究開発最終成果報告書」, (2000).
- 10) 風間伸吾；「CO₂分離回収技術の現状と課題」, RITE World01 2003- I, (財地球環境産業技術研究機構, (2003).
- 11) 酒井清孝監修；「膜分離プロセスの理論と設計」, (株アイピーシー, (1993), 191-226.
- 12) Invensys Systems Inc ; 'Pro II /Provision', (2003).
- 13) 新エネルギー・産業技術総合開発機構；平成13年度調査報告書：「地球温暖化対策技術開発に関する調査／CO₂の分離・回収技術に関する調査研究」, (2002).
- 14) (財地球環境産業技術研究機構；平成10年度地球環境産業技術開発事業 新エネルギー・産業技術総合開発機構委託：「接触水素化反応利用二酸化炭素固定化・有効利用技術研究開発成果報告書」, (1999).
- 15) 川井利長, 鈴木謙一郎；「吸着 (PSA) による廃ガスからのCO₂回収」, 化学装置 8月号, (1989), 54-59.
- 16) (財地球環境産業技術研究機構；平成9年度地球環境産業技術開発事業 新エネルギー・産業技術総合開発機構委託：「接触水素化反応利用二酸化炭素固定化・有効利用技術研究開発成果報告書」, (1998).
- 17) 三村富雄その他；「石炭焚き火力発電所排ガス条件下の炭酸ガス分離・回収への化学吸収法の適用性」, 化学工学論文集第26巻第1号, (2000), 6-9.
- 18) 新エネルギー・産業技術総合開発機構 平成14年度調査報告書：「地球温暖化対策技術開発に関する調査／CO₂の分離・回収技術に関する調査研究」, (2003).