

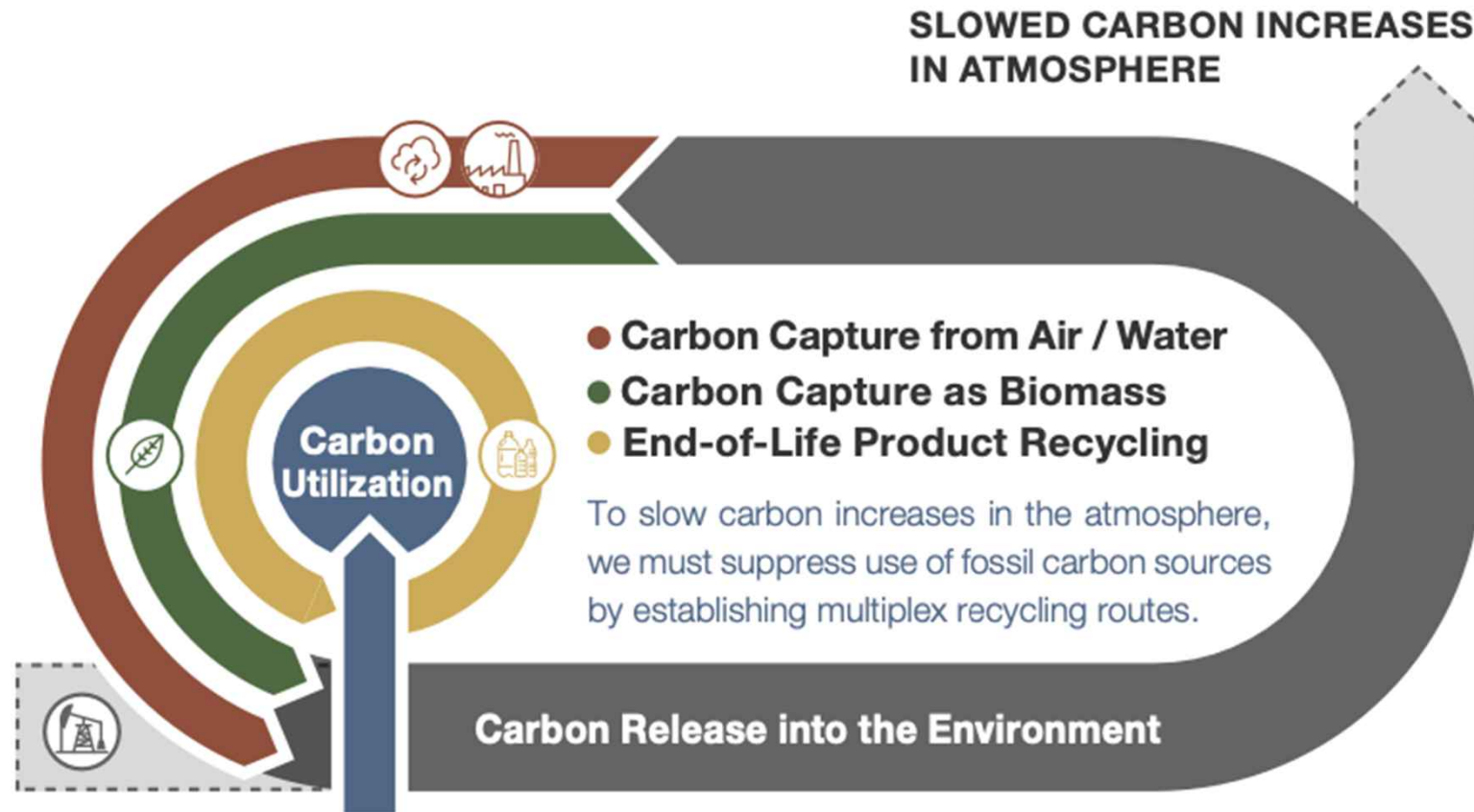
# 大気中 CO<sub>2</sub>を利用可能な統合化固定・反応系 (quad-C systems)の開発



PM：福島 康裕  
東北大学 大学院環境科学研究科 教授

PJ参画機関：  
東北大学、大阪公立大学、  
(株)ルネッサンス・エナジー・リサーチ  
早稲田大学（再委託）

# 将来の炭素資源はどこに？



## 使用後製品

プラスチック, ゴム, 紙, など.

## バイオマス

木材, 草, 藻類, 汚泥,  
農業残さ, ...

## 炭素固定利用 (CCU)

バイオ燃料の燃焼

炭酸化鉱物の脱炭酸 ( $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{MgCO}_3$ , ...)

還元 (バイオコークス, 再生可能メタン...)

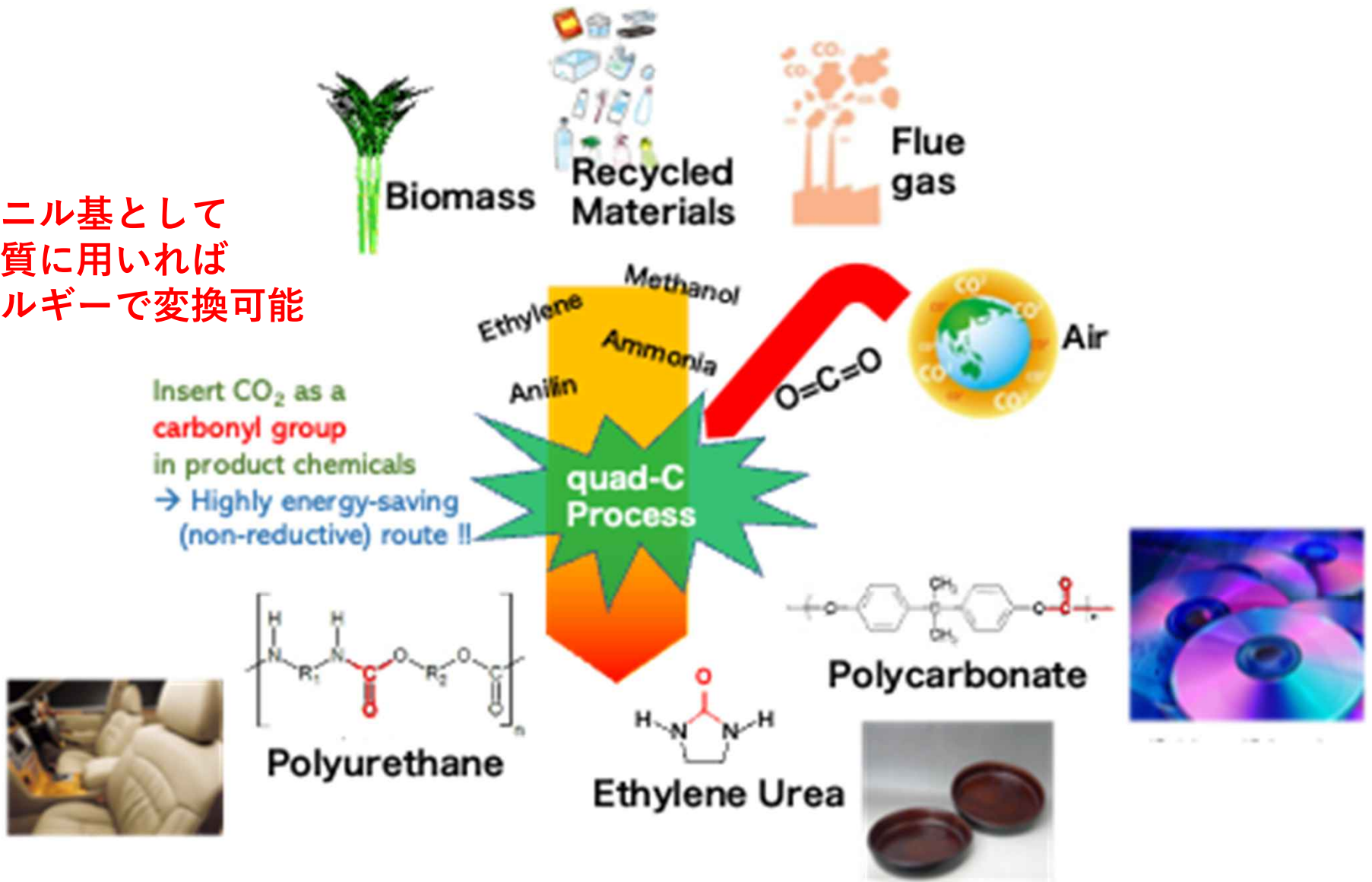
発酵消化ガス

呼吸 (植物, 菌類, 動物)

大気

# 大気中CO<sub>2</sub>を使うなら省エネ（省水素）で！

カルボニル基として  
化学物質に用いれば  
省エネルギーで変換可能



# 大気中CO<sub>2</sub>を使うなら省エネ（省水素）で！

Angewandte  
International Edition  
Chemie

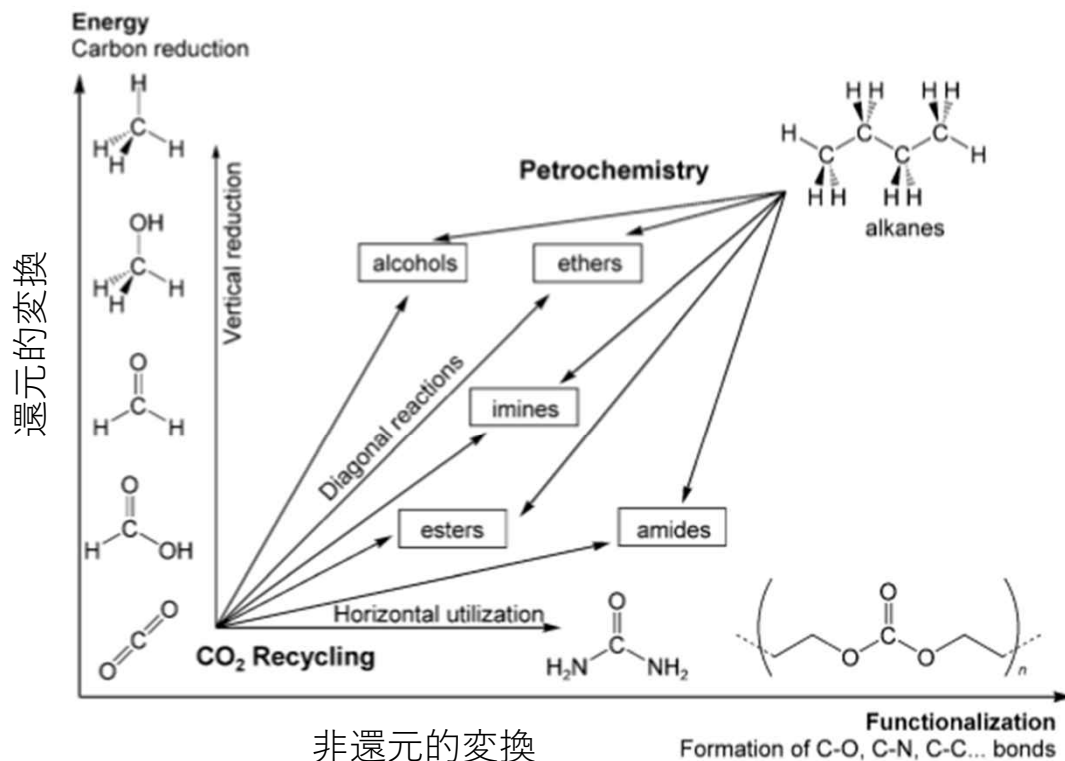
DOI: 10.1002/anie.201105516

**VIP CO<sub>2</sub> Recycling**

**A Diagonal Approach to Chemical Recycling of Carbon Dioxide:  
Organocatalytic Transformation for the Reductive Functionalization of  
CO<sub>2</sub>\*\***

*Christophe Das Neves Gomes, Olivier Jacquet, Claude Villiers, Pierre Thuéry,  
Michel Ephritikhine, and Thibault Cantat\**

Gomes et al. (2012)  
Angew. Chem. Int. Ed. 2012,  
51, 187–190

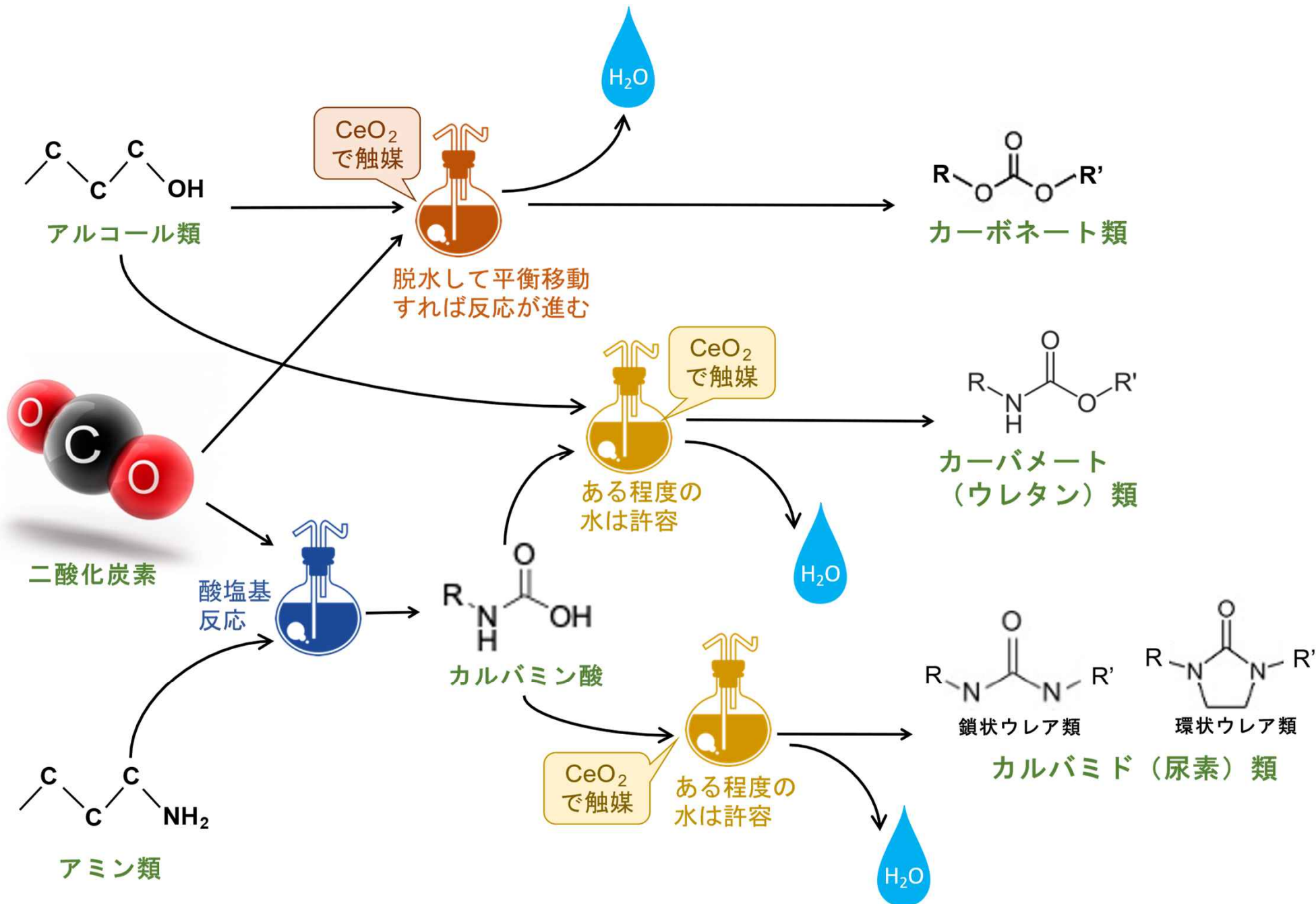


もちろん、プロセス中の分離操作  
にかかるエネルギーも含めて総合的に  
考慮する必要があるが…

反応に必要なエネルギーの観点で見れば、  
CO<sub>2</sub>から製造するのに適した化学物質  
とそうでない化学物質がある

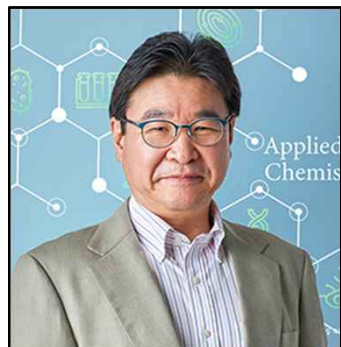
**Figure 1.** Approaches to recycling transformations of CO<sub>2</sub> as alternatives to petrochemical methods.

# カルボニル化合物を得るルート

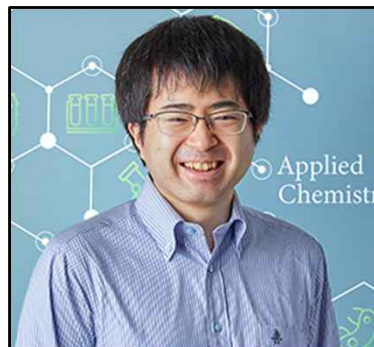


# 実施体制

## 反応系の開拓



**富重 圭一**  
東北大学 教授



**藪下 瑞穂**  
東北大学助教



**田村 正純**  
大阪公立大学  
准教授



**亀田 知人**  
東北大学 准教授



**内田 美穂**  
東北大学  
特任教授  
(クロスアポイント)

- ▶ quad-Cで製造可能な製品を開拓する
- ▶ quad-Cで利用可能な触媒や吸着剤、脱水剤などの反応要素を開拓する
- ▶ quad-Cプロセスの反応機構を先端分析手法で明らかにして性能を向上する

# 実施体制

## Type I プロセスの開発



**岡田 治**  
(株) ルネッサンス・  
エネルギー・リサーチ  
社長



**渡邊 賢**  
東北大学 教授



**野中 利之**  
東北大学  
特任准教授



**平賀 佑也**  
東北大学 助教

- ▶ 大気から低濃度CO<sub>2</sub>を捕捉しつつ、反応液の揮発を許さない膜反応装置の開発
- ▶ 膜反応装置のシミュレーションによる開発指針の策定
- ▶ 物性測定とシミュレーションを合わせた膜材料の探索方法の開発

# 実施体制

## Type IIプロセスの開発



**北川 尚美**  
東北大学 教授



**高橋 厚**  
東北大学 准教授



**廣森 浩祐**  
東北大学 助教



**亀田 知人**  
東北大学 准教授



**中垣 隆雄**  
早稲田大学 教授

- ▶ 吸着によって大気中から捕捉したCO<sub>2</sub>を脱着させることなく直接変換するための装置を開発
- ▶ スケールアップのための指針を獲得
- ▶ DFM（吸着材×触媒）や反応に関するプロセスのための基礎物性の獲得



# 実施体制

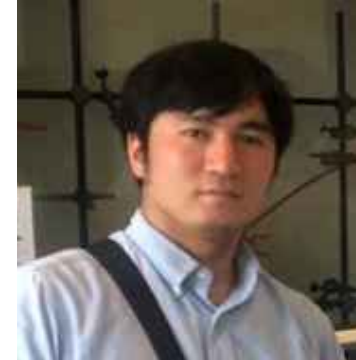
## プロセスシミュレーションと技術経済性分析



**福島康裕**  
東北大学 教授



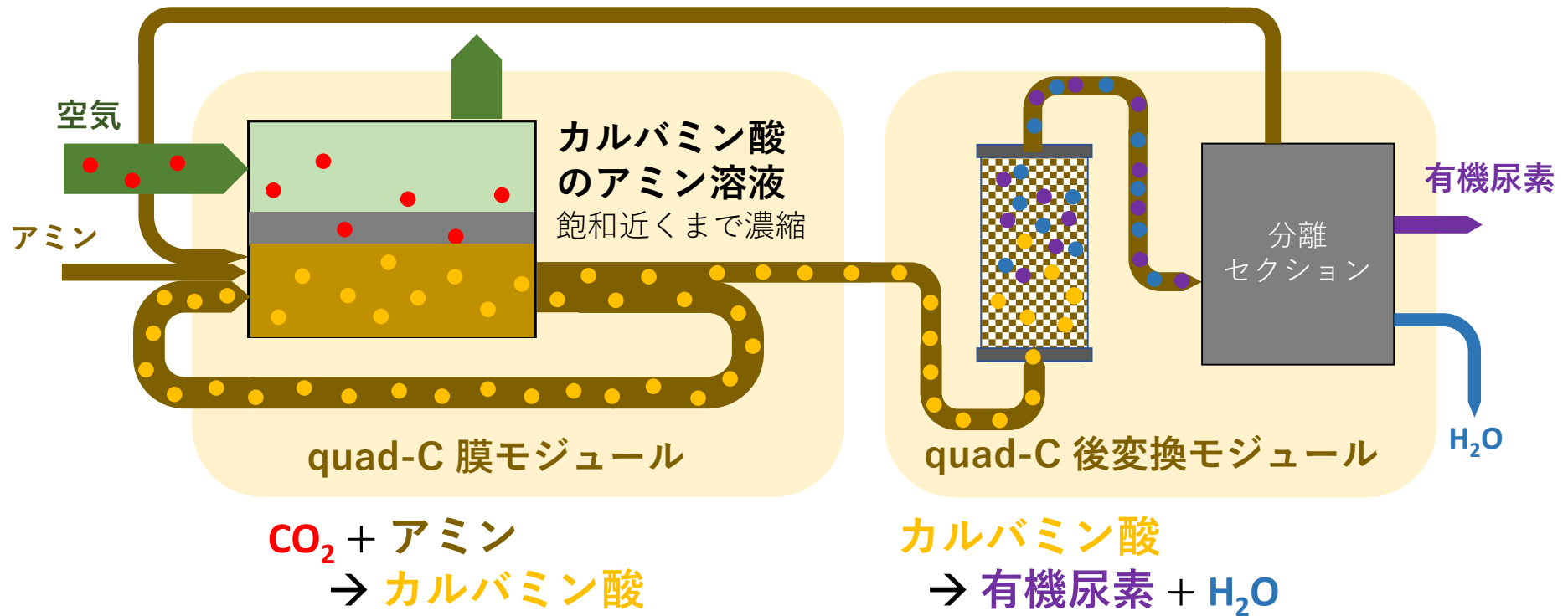
**倪嘉玲**  
東北大学  
特任助教



**八木原 昂輝**  
東北大学  
研究員(D2)

- ▶ プロセスシミュレーションをさまざまなシステム案について実施、プロセスシステムの提案と、プロセス要素技術の開発指針の策定を行う
- ▶ プロセスシミュレーションに基づき、先制的LCAを実施することで、技術開発をモニタリング。過剰な技術性能向上を防ぐ。
- ▶ プロセスシミュレーションに基づき、技術経済性分析を実施することで、社会実装へのギャップやハードルを明らかにする

# Type I プロセス



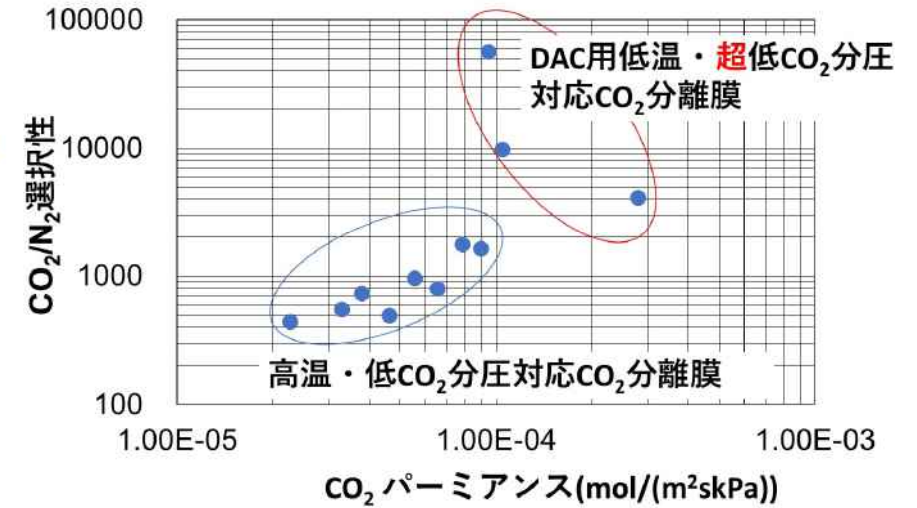
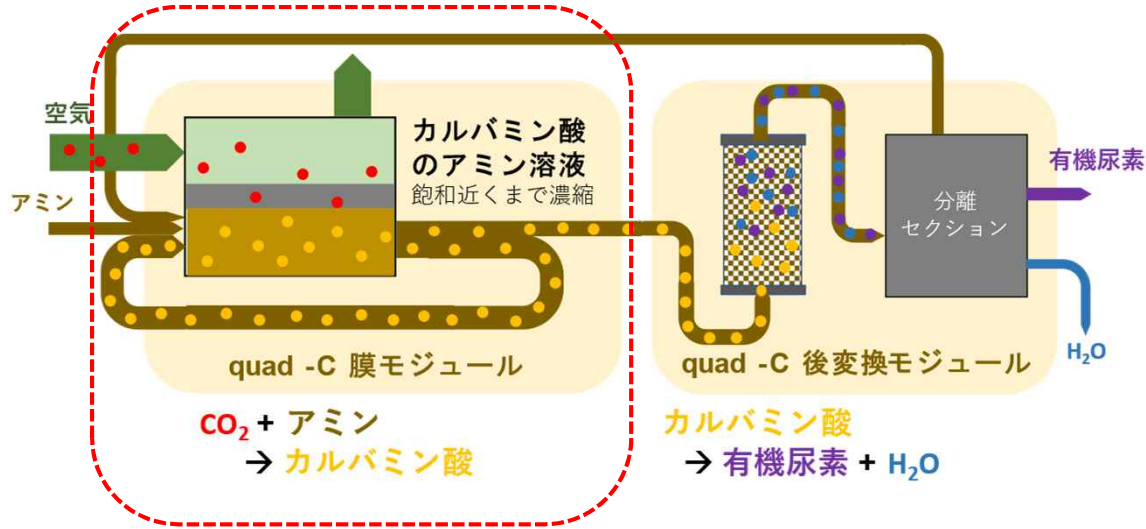
## 必要な性能

- アミンを透過しない
- 空気中のCO<sub>2</sub>以外の成分を排除（特に水）

## 分離負荷の観点から下記はType Iが有利

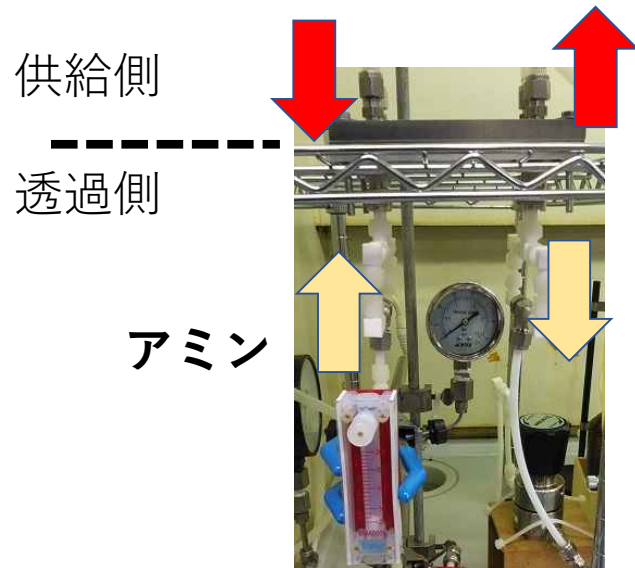
- カルバミン酸のアミンへの溶解度が高い系
- 水との共沸がない
- 目的の有機尿素製品への選択率が高い

# Type I プロセス



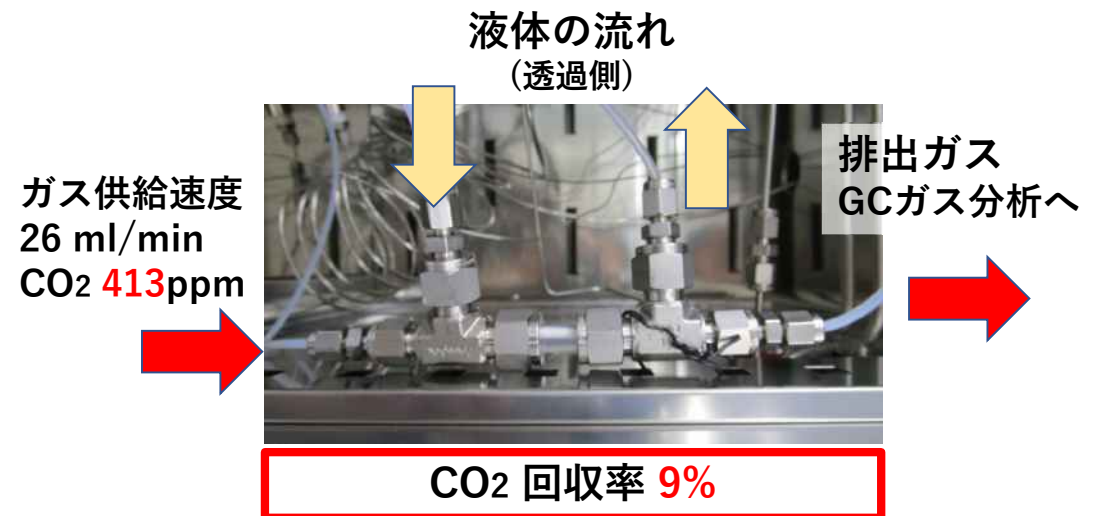
## 平板状膜モジュール試験装置

イオン液体をもちいた液膜(SILMs)の要素材料  
探索基盤を構築

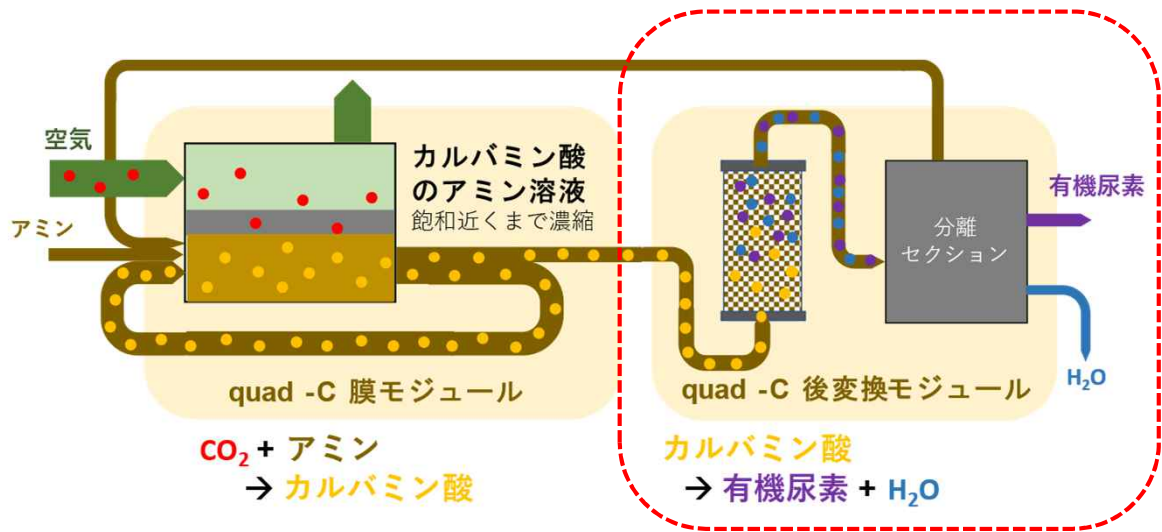


## 中空糸膜モジュール試験装置

内径0.7mmまでの支持体の内側への製膜に成功



# Type I プロセス



エチレンジアミンの場合  
 $T = 90^{\circ}\text{C}$  が最適温度で、  
 このときに、90%以上のエチレン尿素収率を達成

## 流通式 触媒反応 装置

触媒開発  
チームが実施

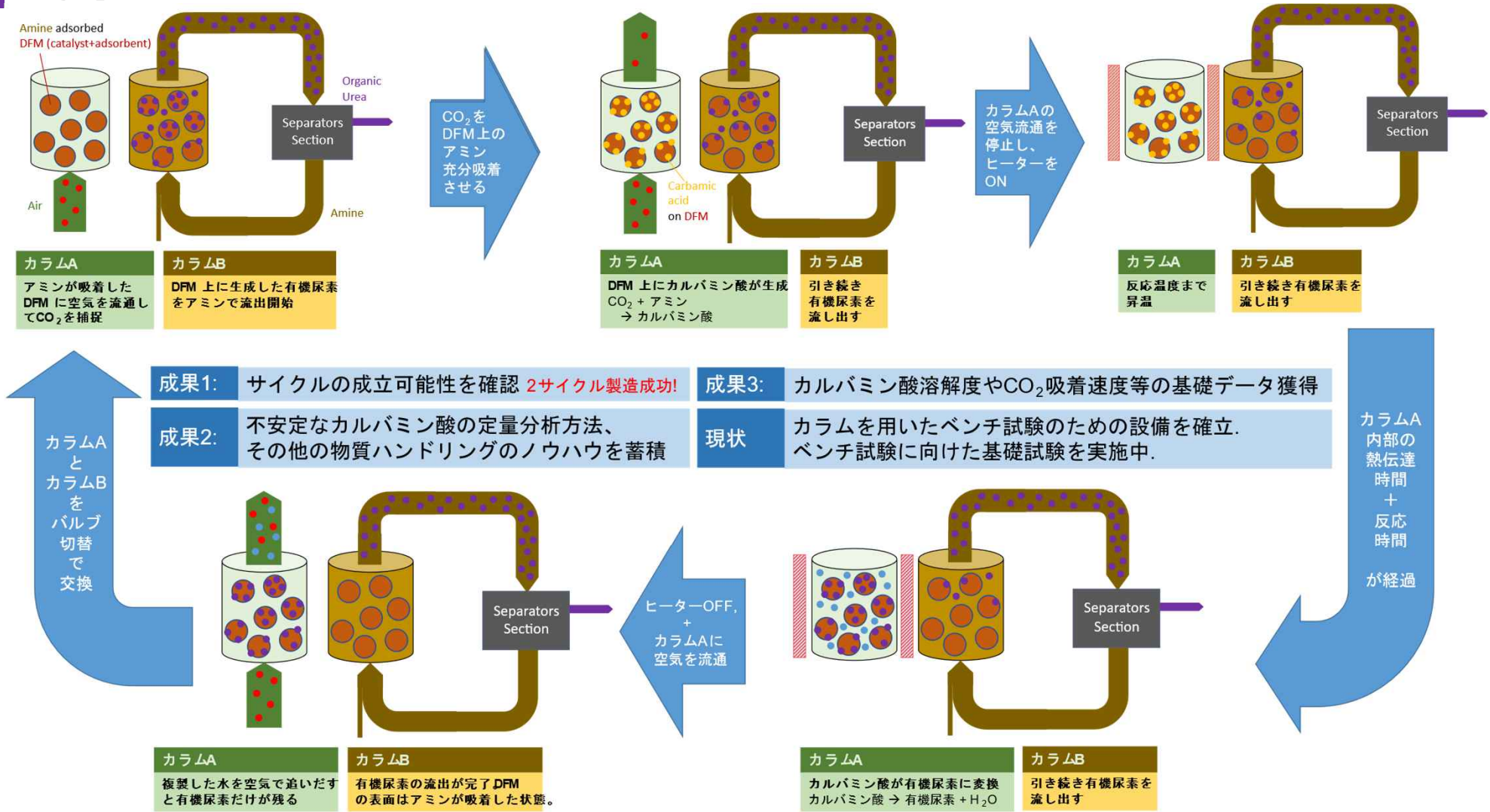


触媒の入った反応器

アミン  
+ 有機尿素

アミン  
+ カルバミン酸

# Type II プロセス



0.04% (400 ppm)の超希薄CO<sub>2</sub>でも十分にCeO<sub>2</sub>表面への吸着が起きることがわかった

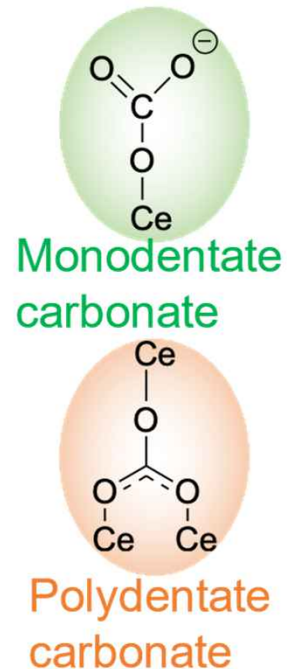
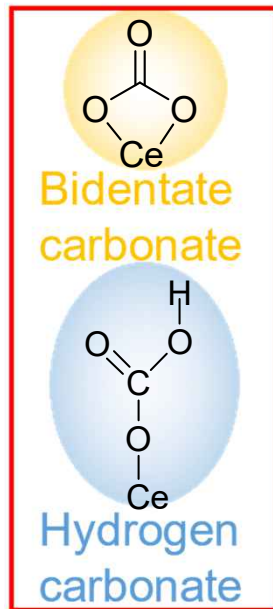
CeO<sub>2</sub>への吸着種は bidentate と hydrogen carbonates であった

ガス中水分の、吸着種とそれらの吸着量への影響を明らかにすることができた

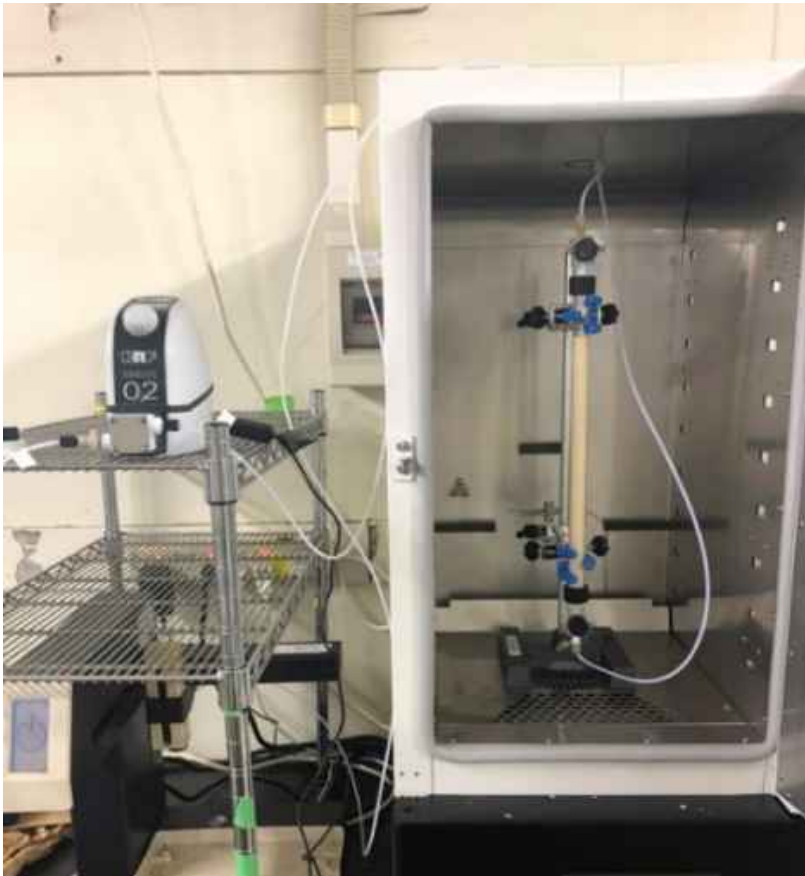
# Type II プロセス

- 0.04% (400 ppm)の超希薄CO<sub>2</sub>でも十分にCeO<sub>2</sub>表面への吸着が起きることがわかった
- CeO<sub>2</sub> への吸着種は bidentate と hydrogen carbonates であった
- ガス中水分の、吸着種とそれらの吸着量への影響を明らかにすることができた

## Major forms



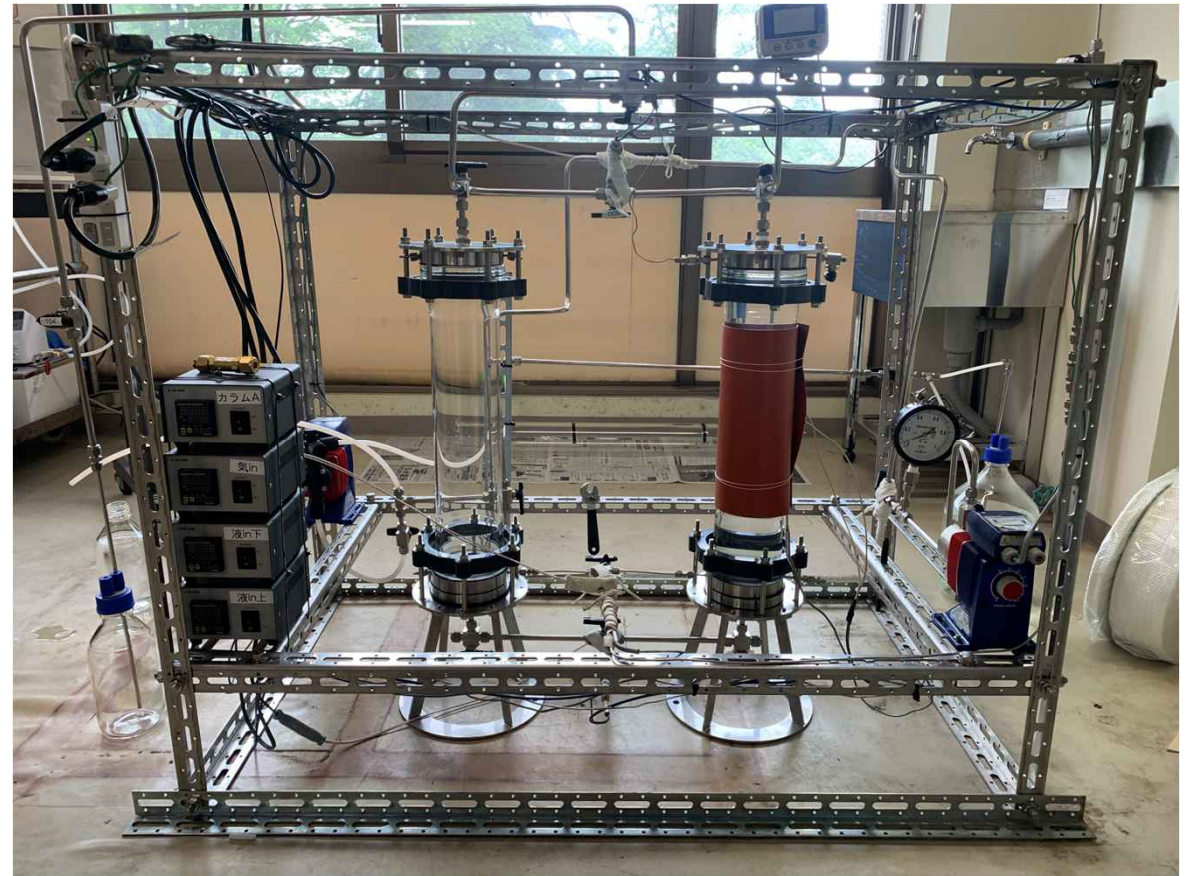
実験装置: FT-IR, 本事業で改造  
(大阪公立大学)



基礎試験

## さまざまな条件を検討

- カラムのアスペクト比  
(= 直径と長さの比率)
- 流速
- その他

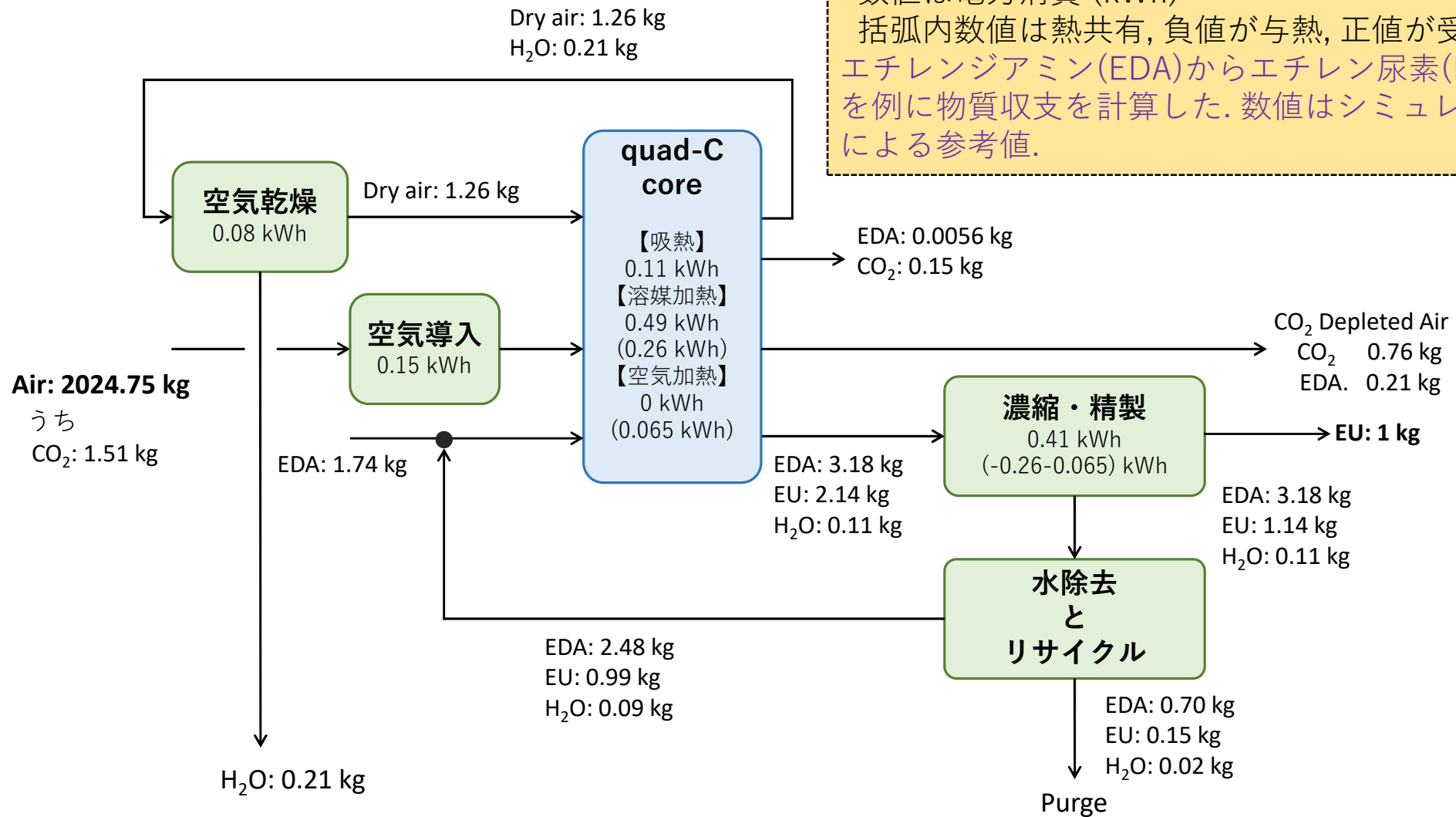


ベンチ試験 (プロトタイプ)

## 大型化に伴う検討事項

- 反応器内温度分布
- 流速分布 (チャネリングの発生など)
- 時定数の相違の解決

# Type II プロセス



モデル化による物質収支計算が可能となった  
→設定した変数を実験で獲得し値を継続的に更新  
ボックス内  
数値は電力消費 (kWh)  
括弧内数値は熱共有, 負値が与熱, 正值が受熱  
エチレンジアミン(EDA)からエチレン尿素(EU)製造  
を例に物質収支を計算した. 数値はシミュレーション  
による参考値.

ベンチ試験はコア部分が対象。パイロットはその他の部分も建設。



# 開発スケジュール

## ▶ 2020 ~ 2024

- ベンチ試験を実施しパイロットプラントの設計指針を得る
- パイロットプラントを建設する反応系とサイトを選定する
- LCAと技術経済性分析のモデル&データベースの基盤公開

## ▶ 2025 ~ 2029

- ベンチ試験の継続による社会実装イメージの実現に向けた検討
- パイロットプラントの建設
- 選定する系に関するパイロット試験の実施

# 社会実装イメージ

## ▶ 大規模から中小規模までさまざまなものが共存

### アミン製造サイトに併設

→ 有機尿素、ウレタン類の複合生産

▶ 触媒の再生プロセスの共有が可能になる

- 焼成
- 再造粒

▶ 空気乾燥プロセスの共有が可能になる

▶ 膜モジュールや反応モジュールについて、需要変動に合わせて生産切替

### 将来のCO<sub>2</sub>排出源に併設

例：バイオガス発電所

ピーク運転時：

バイオガス中のCO<sub>2</sub>を分離して利用

バイオガス燃焼排ガスを利用

オフピーク時：

装置の一部をDACモードに切り替えて

運転し設備稼働率を上げる

### 製品のユーザーとなる工場に併設

→ 必要量を生産

例：塗料工場や建材工場

塗料に必要な物質を自家生産

# 社会実装イメージの実現に向けて

## ▶ 2025-2029実施概要

### 切り替え運転の可否に関する試験

プロセスに供給するアミンの切替に必要な手順は何か  
切替を有利にする条件の割り出し

### 複合生産プロセスの設計

副生物も必要な化学物質であることがあるため、複合生産とすることで総合的な経済最適を得る可能性がある

### モジュール・サービスの標準化と事業設計

- さまざまなスケール、対象の生産について標準モジュールのナンバリングアップとカスケードによって好適なプロセスを柔軟に組み立てることができるようにする
- 共通サービス（触媒再生、再造粒など）の事業設計

### さまざまなCO<sub>2</sub>濃度に対応する生産モードへの対応

シミュレーターの開発と制御方法の確立が必要

# ご清聴ありがとうございました

ムーンショットで描いた当事業の夢を広げ、共に追求する方を募集しています。

学生として

共同研究

事業検討される企業

導入を考えられる地域

など、ご連絡ください。

PM 福島康裕, 東北大学環境科学研究科 教授    Email: [fuku@tohoku.ac.jp](mailto:fuku@tohoku.ac.jp)