

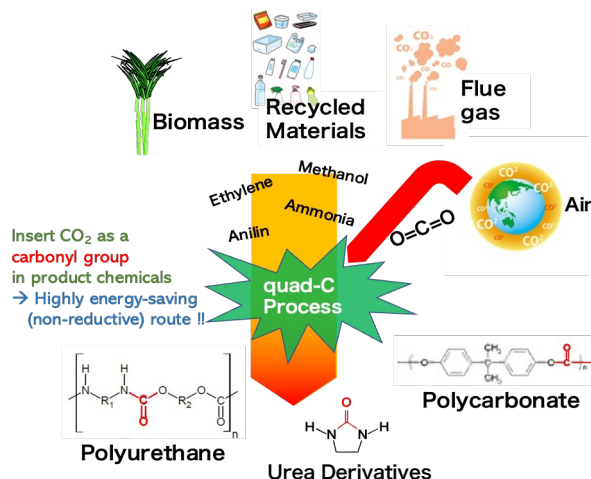
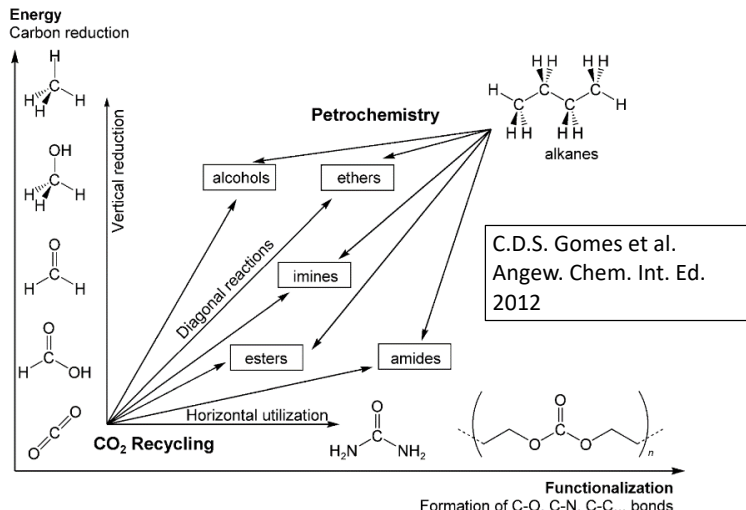
プロジェクト概要

担当機関: 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

問合せ先: 福島 康裕 教授 Email: fuku@tohoku.ac.jp (PM)

開発の背景

- ▶ CO₂ の非還元的利用 (図中horizontal utilization) により省エネ生産が可能
… , ただしより市場規模の小さい、多様な川下製品の生産が必要



大気中CO₂の捕捉と利用にむけた戦略

- ▶ カーボンニュートラル社会ではますます省エネルギーが重要!

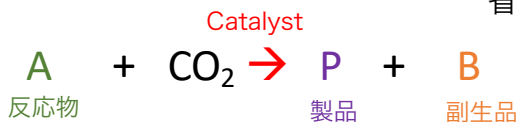
DAC-Uの共通課題:

反応以外でもエネルギー消費が大きい:

- 1) 反応系への空気の導入
- 2) CO₂ の脱離と圧縮
- 3) 製品の分離

Dual Function Materials (DFMs) を使って大気中からCO₂を捕捉しよう

2) CO₂ の脱離と圧縮を不必要にして省エネを達成



詳細は Poster A-4-4J にて報告

quad-C Type I プロセス:

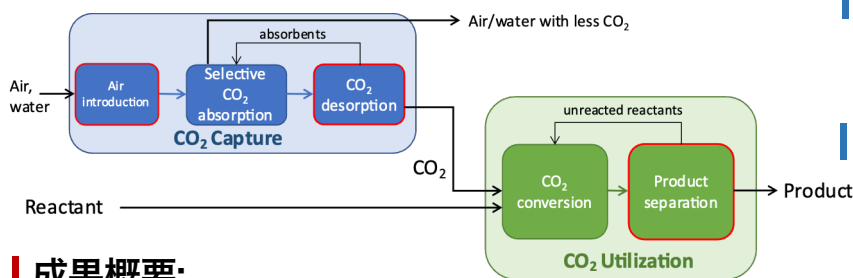
DFM: 反応物 × CO₂吸収剤
大量の空気との接触によるDFMロスを防ぐためにCO₂選択透過膜を開発

詳細は Poster A-4-2J にて報告

quad-C Type II プロセス:

DFM: 触媒 × CO₂吸着材
本プロジェクトでは CeO₂のDFMとしての利用を開拓、さらに類似の機能を発揮する新たなDFMを発見した。

詳細は Poster A-4-3J にて報告



成果概要:

- ▶ 博士課程の学生4名が学位取得(見込を含む)

Peng Jie 氏 (触媒反応系開発担当, 東北大富重研, 2023)
Yang Xinyi 氏 (DFM開発担当, 東北大吉岡研亀田グループ, 2023)
八木原昂輝 氏 (プロセスシミュレーション担当, 東北大福島研, 2024)
藤井亮太郎 氏 (触媒反応系開発担当, 東北大富重研, 2024)

- ▶ 知財

2件の特許申請済 (1 PCT, 1 国内)
スピンアウトのための反応形式に関する特許を申請準備中

- ▶ 学術論文: 加えて数本投稿準備中 青: CeO₂系, 緑: FeCeO₂系, 赤: 評価系

1. CeO₂-Catalyzed Synthesis of 2-Imidazolidinone from Ethylenediamine Carbamate, ACS Omega, 2021
2. Analyzing flue gas properties emitted from power and industrial sectors toward heat-integrated carbon capture, Energy, 2022
3. CeO₂-catalyzed transformation of various amine carbamates into organic urea derivatives in corresponding amine solvent, Applied Catalysis A: General, 2022
4. Continuous Flow Synthesis of 2-Imidazolidinone from Ethylenediamine Carbamate in Ethylenediamine Solvent over the CeO₂ Catalyst: Insights into Catalysis and Deactivation, ACS Catalysis, 2023
5. Effective synthesis of ethylene urea from CO₂ adsorbed cerium doped Mg-Al layered double hydroxide, Journal of Cleaner Production, 2023
6. Enrichment of carbon dioxide using Mg-Al layered double hydroxides, Chemical Engineering Research, 2023
7. Adsorption behavior of atmospheric CO₂ with/without water vapor on CeO₂ surface, Applied Catalysis B: Environmental, 2024
8. Assessing economic trade-off for advances in amine-based post-combustion capture technology, Journal of CO₂ Utilization, 2024

- ▶ ムーンショット事業からのスピンアウト

TREホールディングスと「WX協創研究所」設立。大気→廃棄物燃焼排ガスと対象を展開



2023年 | プレスリリース・研究成果

「TREホールディングス×東北大学WX (Waste Transformation) 共創研究所」を開所 - 廃棄物処理の革新的プロセスの開発とCCU技術の社会実装-

2023年12月1日 11:00 | プレスリリース・研究成果

【発表のポイント】

- 国立大学法人東北大学と、TREホールディングス株式会社は、「TREホールディングス×東北大学WX (Waste Transformation) 共創研究所」を共同設立しました。
- 廃棄物の焼却処理とCO₂回収処理を統合する革新的プロセスの開発に取り組み、CCU (Carbon Capture Utilization) 技術の社会実装を目指します。

Type II Quad-C: プロセスの概念設計とエネルギー分析

担当機関: 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

問合せ先: 福島 康裕 教授 Email: fuku@tohoku.ac.jp (PM)

主要メンバー



福島康裕 (教授)
Ni Jia-Ling (助教)
八木原昂輝 (博士学生)
シミュレーションによる
実験に先立った知見の獲得



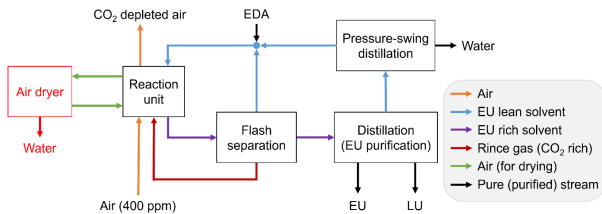
富重圭一 (教授)
藪下瑞帆 (助教)
Peng Jie (博士学生, 卒業)
藤井亮太郎 (博士学生)
小型装置での触媒試験による
条件の提供と反応系の知見の提供



北川尚美 (教授)
高橋厚 (准教授)
廣森浩祐 (助教) *スケールアップ
装置開発*
中村未来 (研究員)
遠藤隆子 (研究員)

Type II プロセスの設計

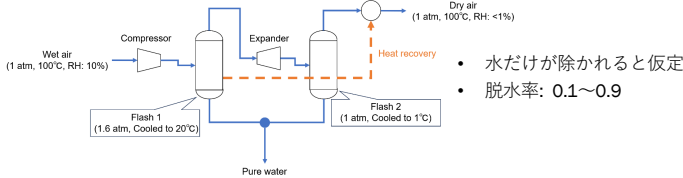
概念図



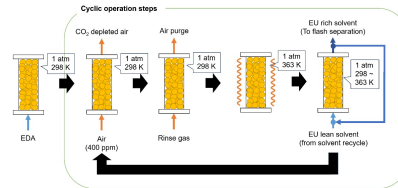
実験から得た設定値

- EDA-CA/EDA比率@EU合成: 9.2 mol%
- 収率
 - CO₂ 固定・・・CO₂ 化学吸収反応率: 100%
 - EU 合成・・・EU: 51%, LU: 2.5% (EDA-CA 基準)

Air dryer

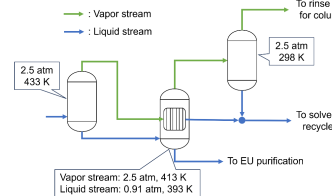


Reaction unit



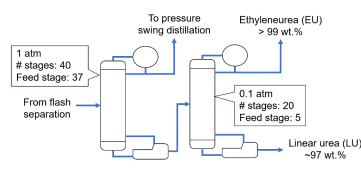
- 通気時間は反応時間と同一 (4.5 h)
- EU内部リサイクル率: 0.1~0.9
- EUの濃縮のため内部リサイクルを設ける

Flash separation

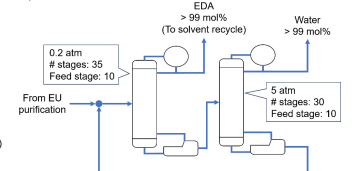


- フラッシュ分離からの排出ストリーム
 - リンスガス用 (高CO₂ 濃度)
 - 内部リサイクル用 (EU濃度低)
 - EU分離用 (EU濃度高)

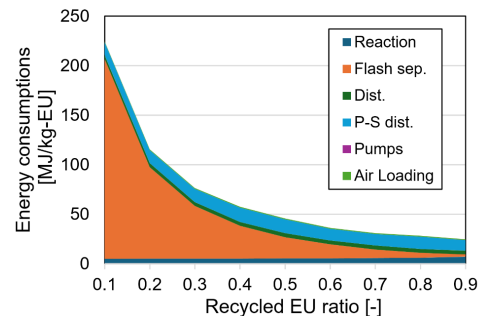
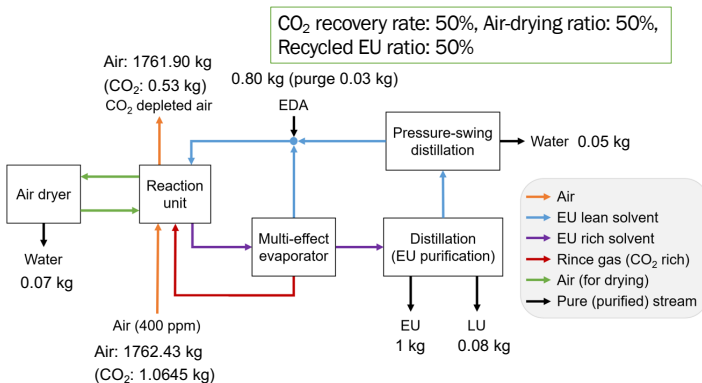
Distillations for EU purification



Pressure-swing distillation

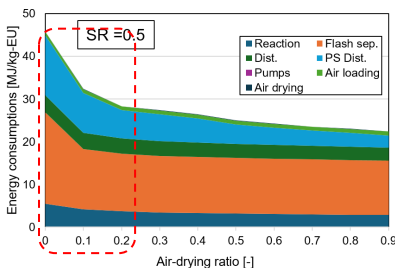


Type IIプロセスの物質収支とエネルギー解析

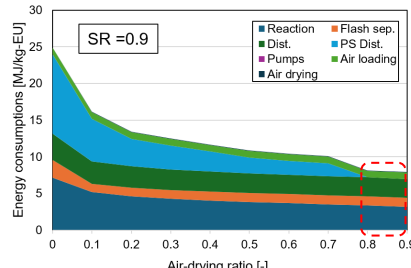


空気乾燥なし: 内部リサイクルによるEU濃縮で大幅な省エネを達成

実際には過長なEUの反応系内滞留は副生LUなどを生成する恐れがある → 試験で明らかにする必要あり



内部リサイクル率を高くできない場合 10~20%の水分除去により…効率的に省エネルギー化



内部リサイクル率を高くできる場合 80%程度まで水分除去すると…PSDの簡略化によって大きな省エネルギー化の達成可能性

DFM開発と吸着メカニズムの解明

担当機関: 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

問合せ先: 福島 康裕 教授 Email: fuku@tohoku.ac.jp (PM)

主要メンバー



田村正純 (准教授)
赤柄誠人 (特任助教)

分光分析による触媒メカニズムや吸着状態の分析



富重圭一 (教授)

数下瑞帆 (助教)
Peng Jie (博士学生, 卒業)
藤井亮太郎 (博士学生)

小型装置での触媒試験による条件の提供と反応系の知見の提供



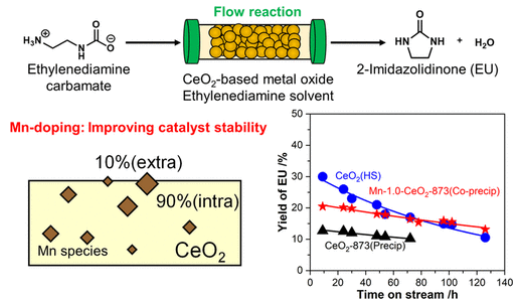
亀田知人 (教授)

Fiona Motswaiso (研究員)
楊心怡 (博士学生, 卒業)
Farzana Rahman (研究員)
Sandia Primeira (研究員)

LDHやZr系など、酸化セリウム以外のDual Function Material (DFM)の開発

材料開発

触媒の活性維持



R. Fujii et al. ACS Catalysis, 2023

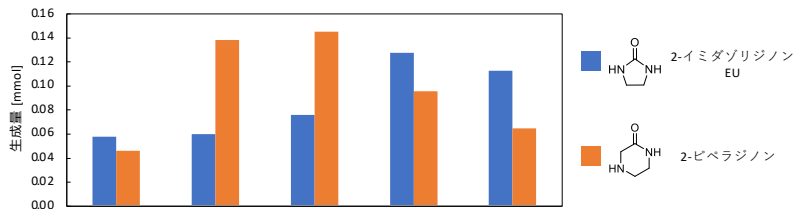
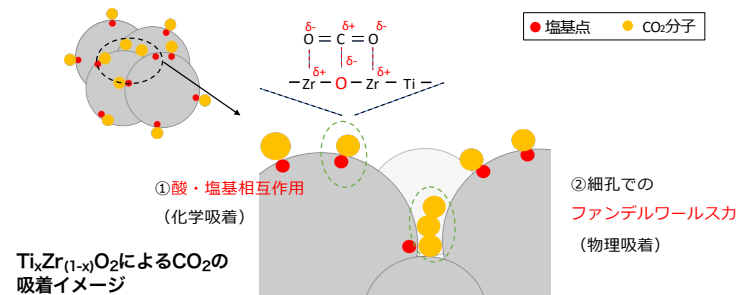
ポリウレア様の物質が触媒表面を覆って失活してしまうのを防ぐことができた。

酸 (微量)への耐性

NO_xやSO_xなどの酸性物質は、排ガス中には脱硫・脱硝処理後も微量に含まれる。大気を原料とする場合であっても同様である。

それぞれの物質がどれくらいまで含まれていてもエチレン尿素を製造可能であるかについて、データを獲得した。(未発表)

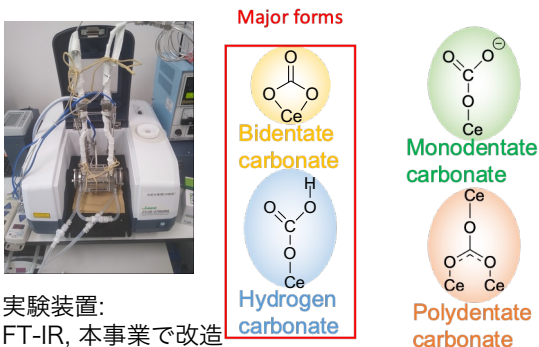
選択率の向上と吸着量の増大



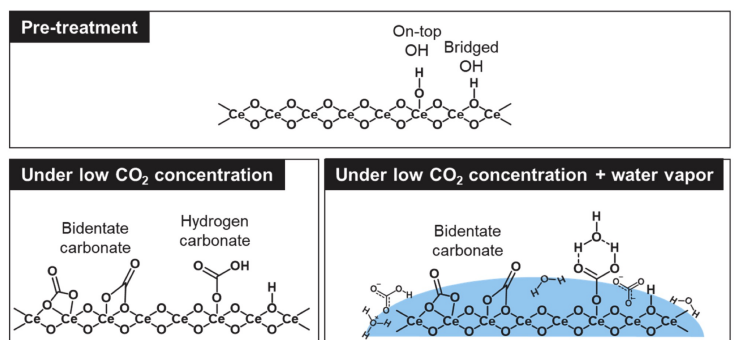
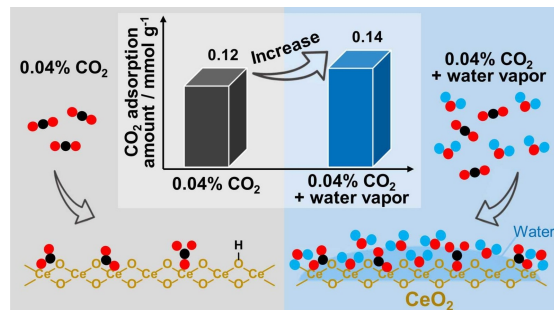
Ti_{1-x}Zr_(1-x)O₂は
 ✓ CO₂供給源かつ反応促進剤として適している
 ✓ Zrの割合が高い程、EU生成の選択性向上

吸着メカニズム

Akatsuka et al. Applied Catalysis B: Environmental, 2024



実験装置:
FT-IR, 本事業で改造



0.04% (400 ppm)の超希薄CO₂でも十分にCeO₂表面への吸着が起きることがわかった

CeO₂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 I プロセス：膜モジュールによるアミンのDFM利用

担当機関：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

問合せ先：福島 康裕 教授 Email: fuku@tohoku.ac.jp (PM)

Members

膜モジュール開発



岡田 治
(株)ルネッサンス・エナジー・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

プロセスシミュレーション



福島康裕
東北大学 教授

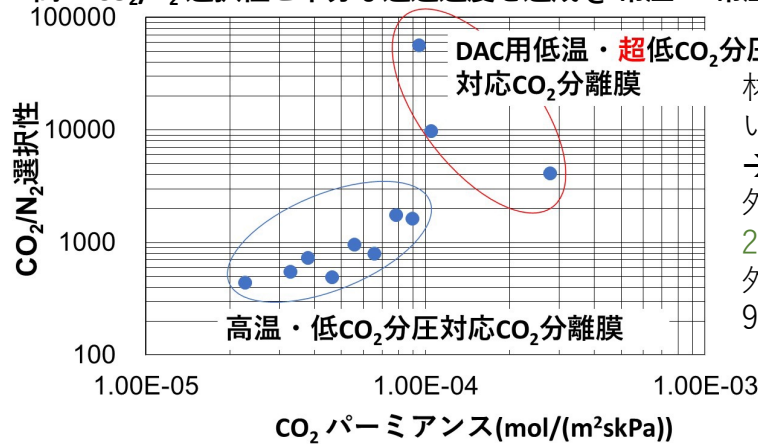


倪嘉玲
東北大学 助教

Type I quad-C process

▶ 従来と比べて非常に優れた促進輸送膜の開発に成功

高い CO₂/N₂ 選択性と十分な透過速度を達成 @ 常温・常圧



材料・内径・細孔径の異なる中空糸支持体を用いて製膜

→ 内径0.7mmまでの支持体の内側への製膜に成功
外径1.2mmの支持体の膜でCO₂透過速度：

2.7 × 10⁻⁴ mol/m²skPa、対N₂選択性4,000

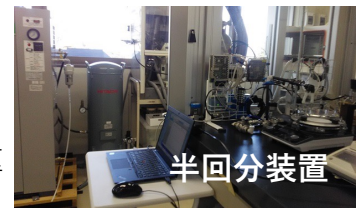
外径3mmの支持体の膜ではCO₂透過速度：

9.5 × 10⁻⁵ mol/m²skPa、対N₂選択性55,000

▶ イオン液体を用いる膜モジュール開発のための基礎的検討

✓ in-situ ラマン分光法による溶解度測定等を駆使したイオン液体種の探索

✓ 設計のための小型膜セル(半回分・流通装置)によるDAC実験
(流量120L/min, CO₂移動速度(時間平均): 1~3 × 10⁻⁴ mol/m²s)



半回分装置

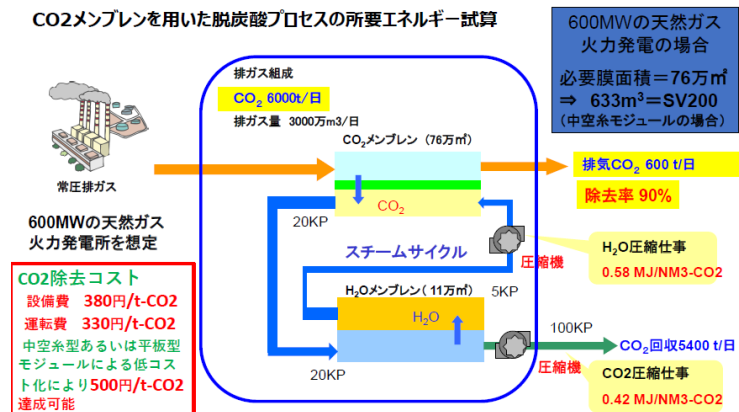


流通装置

▶ スピンアウト戦略

事業ステージ：脱炭酸プロセスの検討状況(発電排ガス対象)

CO₂メンブレンを用いた脱炭酸プロセスの所要エネルギー試算



CO₂除去コスト
 設備費 380円/t-CO₂
 運転費 330円/t-CO₂
 中空糸型あるいは平板型モジュールによる低コスト化により500円/t-CO₂達成可能

600MWの天然ガス火力発電の場合
 必要膜面積=76万m²
 ⇒ 633m³=SV200 (中空糸モジュールの場合)

既存のCO₂分離・回収技術である吸収法や吸着法はエネルギー多消費型であるが、CO₂選択透過膜による膜分離法では、メンブレンを介してCO₂の吸収と放出を行わせることで、CO₂の吸収時に発生するエネルギー(吸収熱)がCO₂放出のためのエネルギーに利用されるため、省エネルギープロセスとなる。本技術を各種CO₂源へ応用すると共に、回収したCO₂から高効率でメタンを製造・活用することで、炭素循環社会モデルを構築する。

膜面積76万m²のCO₂メンブレンで 6000 t/日 のCO₂のうち 5400 t/日 を除去可能 (除去率 90%)

要するエネルギー 76万kWh/日 ⇒ 1.0MJ/NM³-CO₂