

“ビヨンド・ゼロ” 社会実現に向けた CO₂循環システムの研究開発



PM：藤川茂紀
九州大学 カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所 教授
PJ参画機関：
熊本大学・北海道大学・東京大学・鹿児島大学・大阪工業大学
イリノイ大学・株式会社ナノメンブレン

膜の厚み : 34 nm

食品用ラップの1/300程度の薄さ
(COVID-19 ウィルスよりも薄い!)

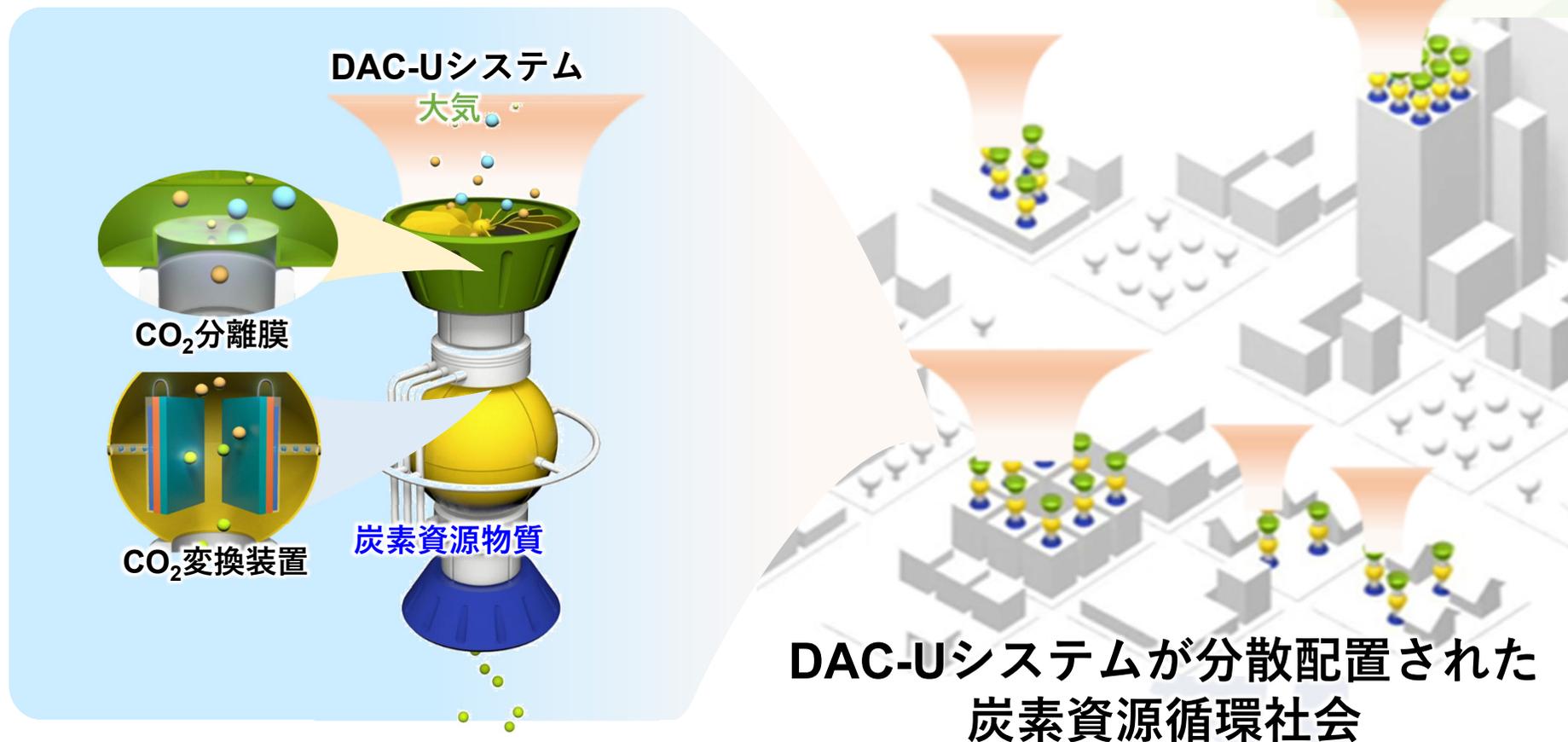


CO₂透過度 : 世界トップ

これまで報告されてきた分離膜性能の約20~30倍程度

圧倒的に高いCO₂透過量を持つ、独自開発の革新的な分離ナノ膜によって、これまで不可能と思われてきた、膜分離による大気からのCO₂の回収を実現する。この膜分離ユニットと電気化学的/熱化学的CO₂変換ユニットを連結して、大気CO₂の回収から炭素燃料製造までを連続・一貫して行う「**Direct Air Capture and Utilization (DAC-U)システム**」を創出する。サイズ拡張性のあるDAC-Uシステムを分散配置し、地産地消型の炭素資源循環社会の構築に貢献する。

“場所に適したサイズ・規模のDAC-Uを分散配置”





CO₂分離ナノ膜

高CO₂透過能力を有する分離ナノ膜

1000倍以上濃縮



CO₂変換

透過ガス：濃縮 CO₂ + N₂, O₂, Ar

酸素共存下でCO₂を還元



CO₂混合ガスからのグリーン燃料製造

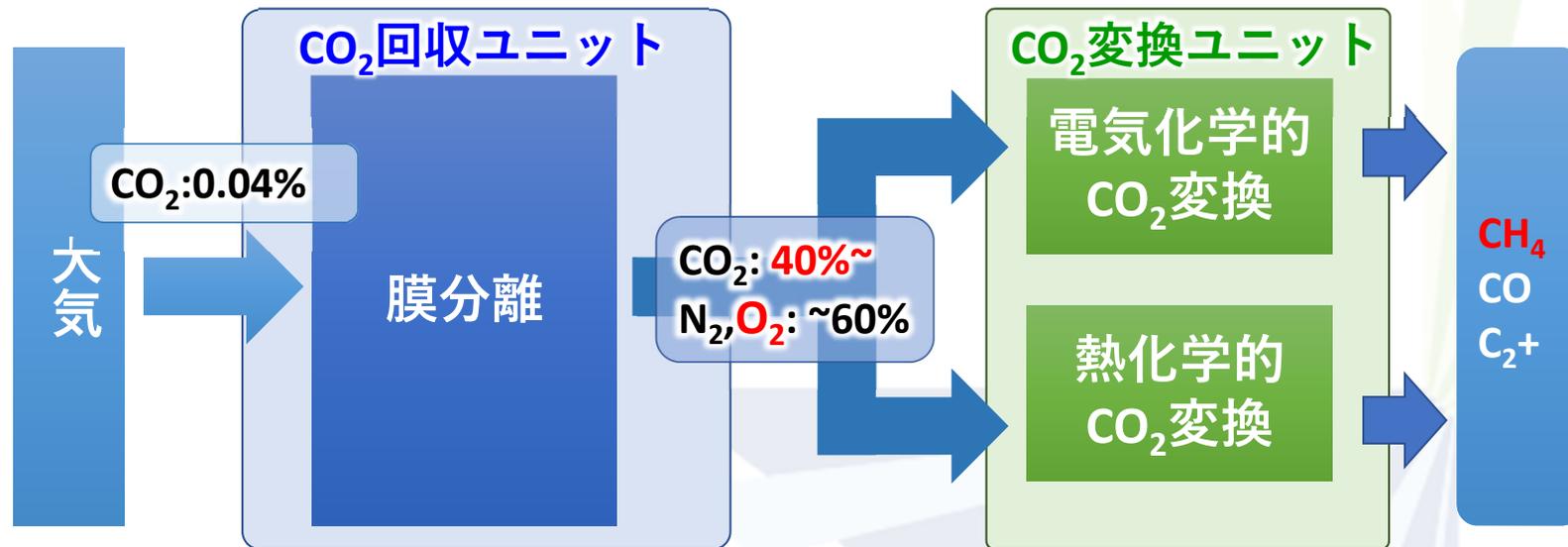


CO, CH₄, エタノール, C_xH_y

開発物

- 膜分離による大気からのCO₂回収ユニット
- 電気・熱化学によるCO₂変換ユニット
電気化学型：H₂未供給地点での利用を想定
熱化学型：H₂供給地点での利用を想定

最終ターゲットパイロット
各ユニットが連結された小型システム



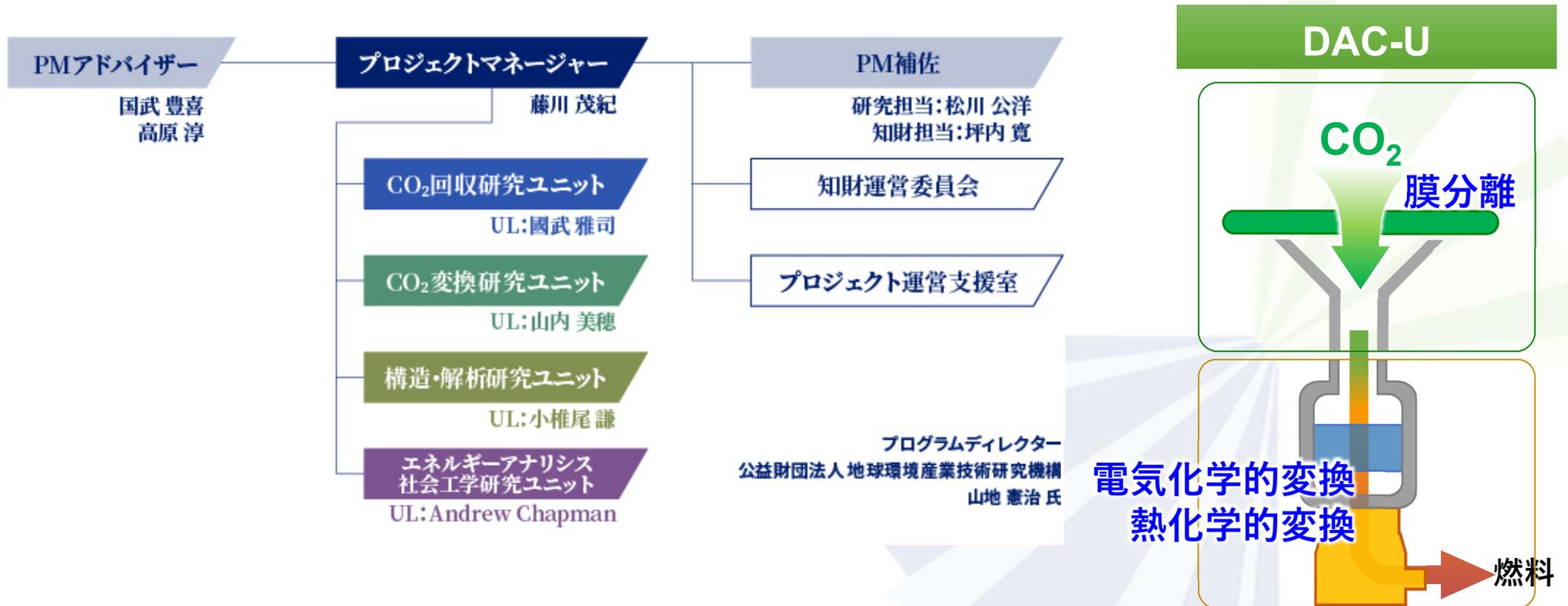
プロジェクト開始時に想定した解決すべき第一課題

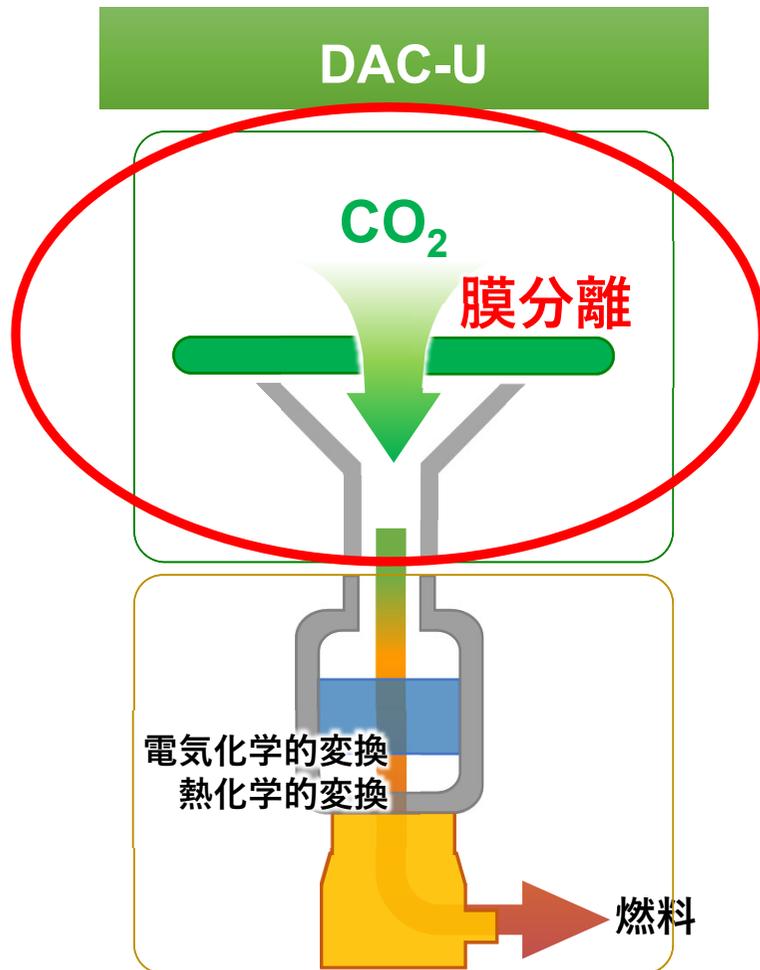
- 選択性のある分離ナノ膜を大面積作製しCO₂を分離回収可能か
- どのような化成品が製造可能か
- O₂混合ガスを原料ガスとしてCO₂を変換できるか？

2022年度KPI

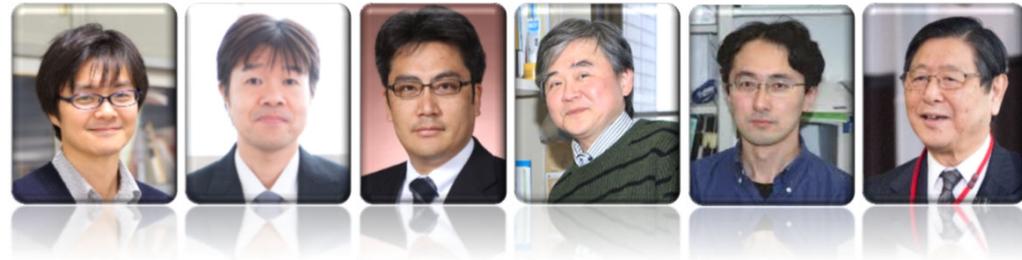
高いCO₂選択性を示す分離膜基本材料を選定する。

CO₂混合ガスからのCO, CH₄, C₂H₄などの基礎化成品への変換を実証



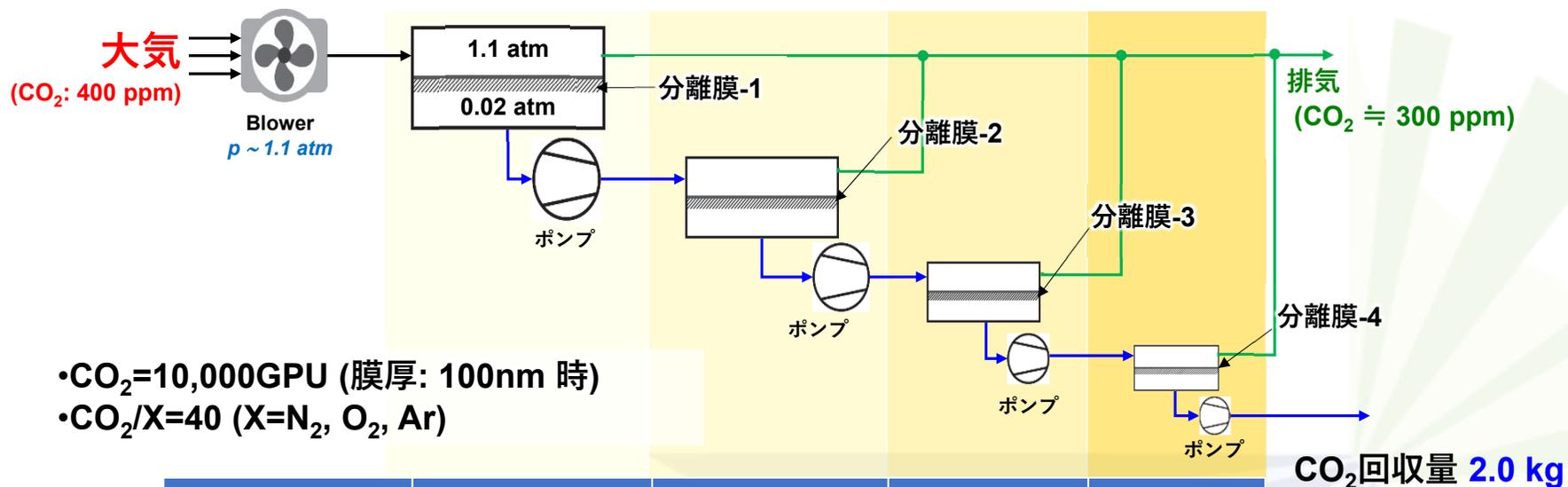


高いスケーラビリティを持ち 分散配置可能な CO_2 回収技術の実現



- 藤川茂紀 (九州大学)
- 國武雅司 (熊本大学, ユニットリーダー)
- 平井智康 (大阪工業大学)
- 金子義郎 (鹿児島大学)
- 野呂真一郎 (北海道大学)
- 国武豊喜 (株式会社ナノメンブレン)

- 最終回収CO₂量: 2.0 kg/day
- 最終CO₂純度: 40 %以上(1000倍濃縮)



- CO₂=10,000GPU (膜厚: 100nm 時)
- CO₂/X=40 (X=N₂, O₂, Ar)

	膜分離-1	膜分離-2	膜分離-3	膜分離-4
膜面積 (m ²)	7.32	0.988	0.195	0.047
CO ₂ 濃度 (%)	0.8	5.6	23.2	56.3

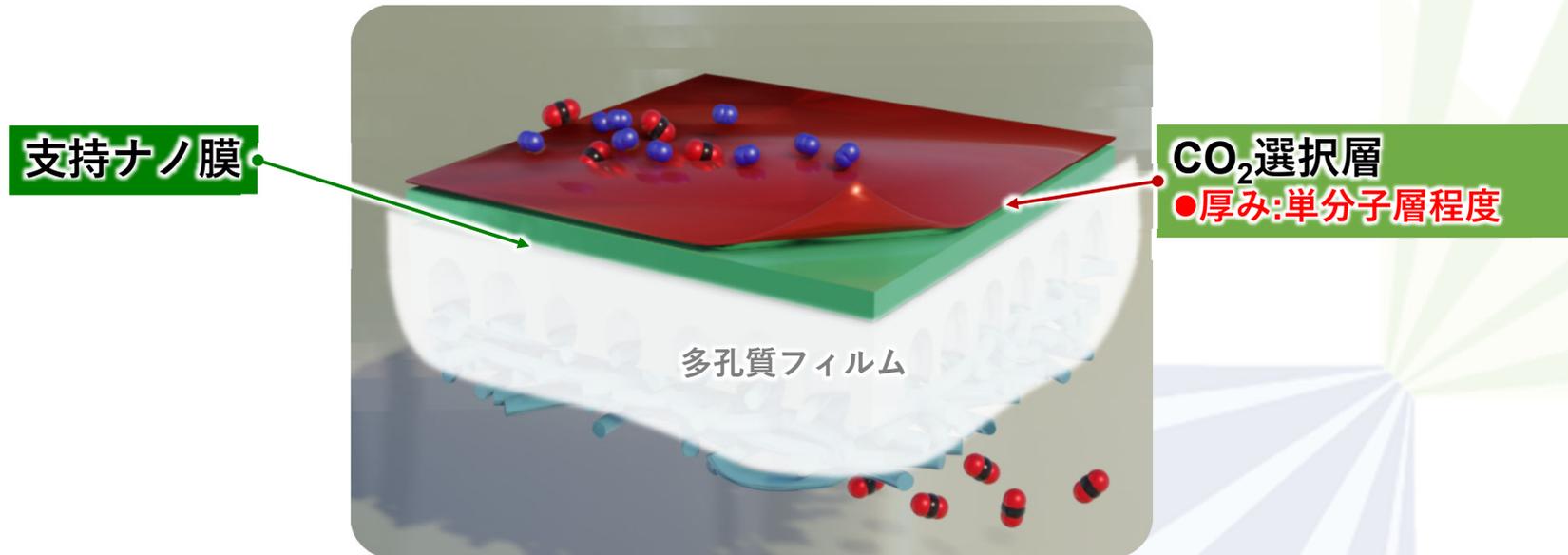
膜性能目標値

- CO₂透過度: 10,000 GPU以上
- CO₂/O₂, CO₂/N₂選択性: 30以上
- 必要膜全体面積 (4段分): 10 m²以下

目標とする膜作製に向けたアプローチ

分離膜の設計：CO₂選択層＋支持ナノ層（＋多孔質フィルム）の複層構造

- 分離構造の保持：自立性があり高透過性の支持ナノ膜
- 選択性の向上：多様なCO₂選択材料の探索が可能



開発ステップ

①支持ナノ膜

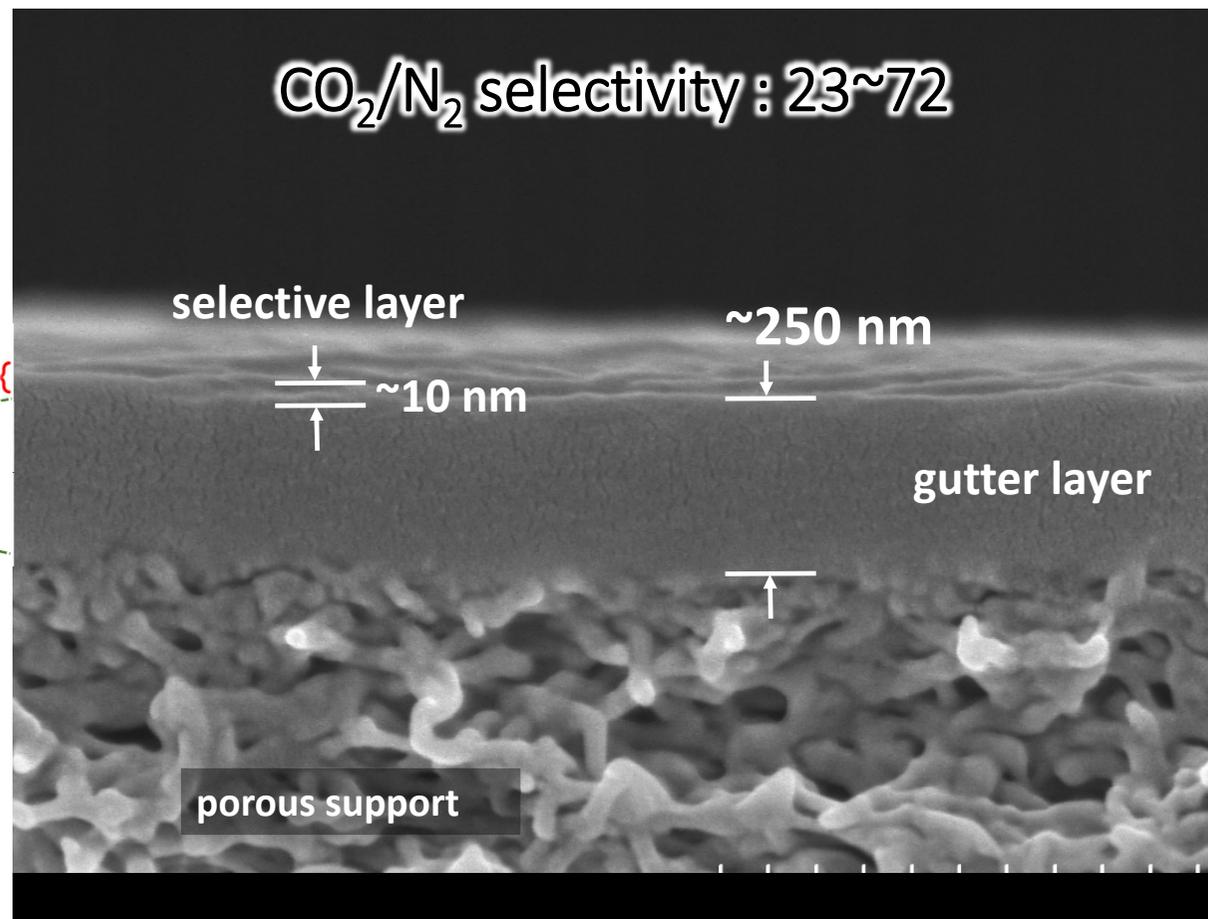
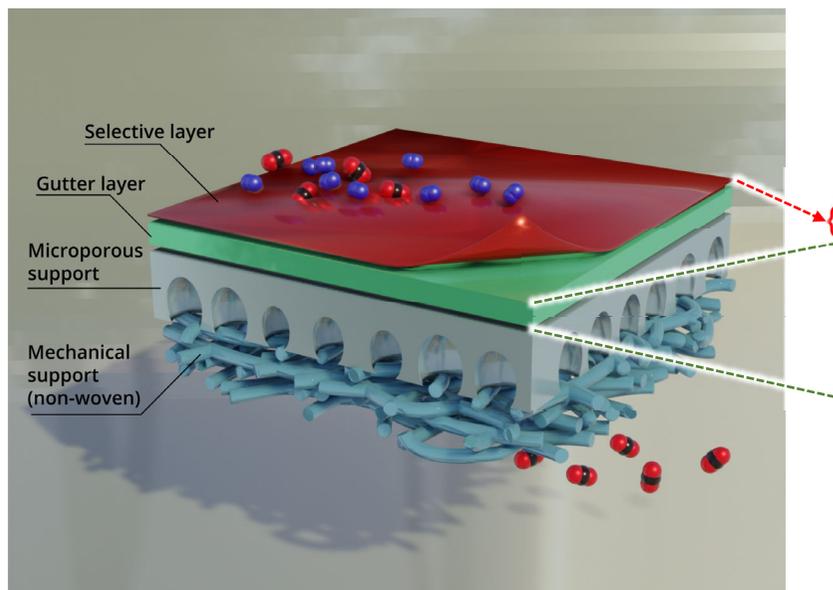
- ・ 高いCO₂透過性を持つシリコン材料の開発

②選択層

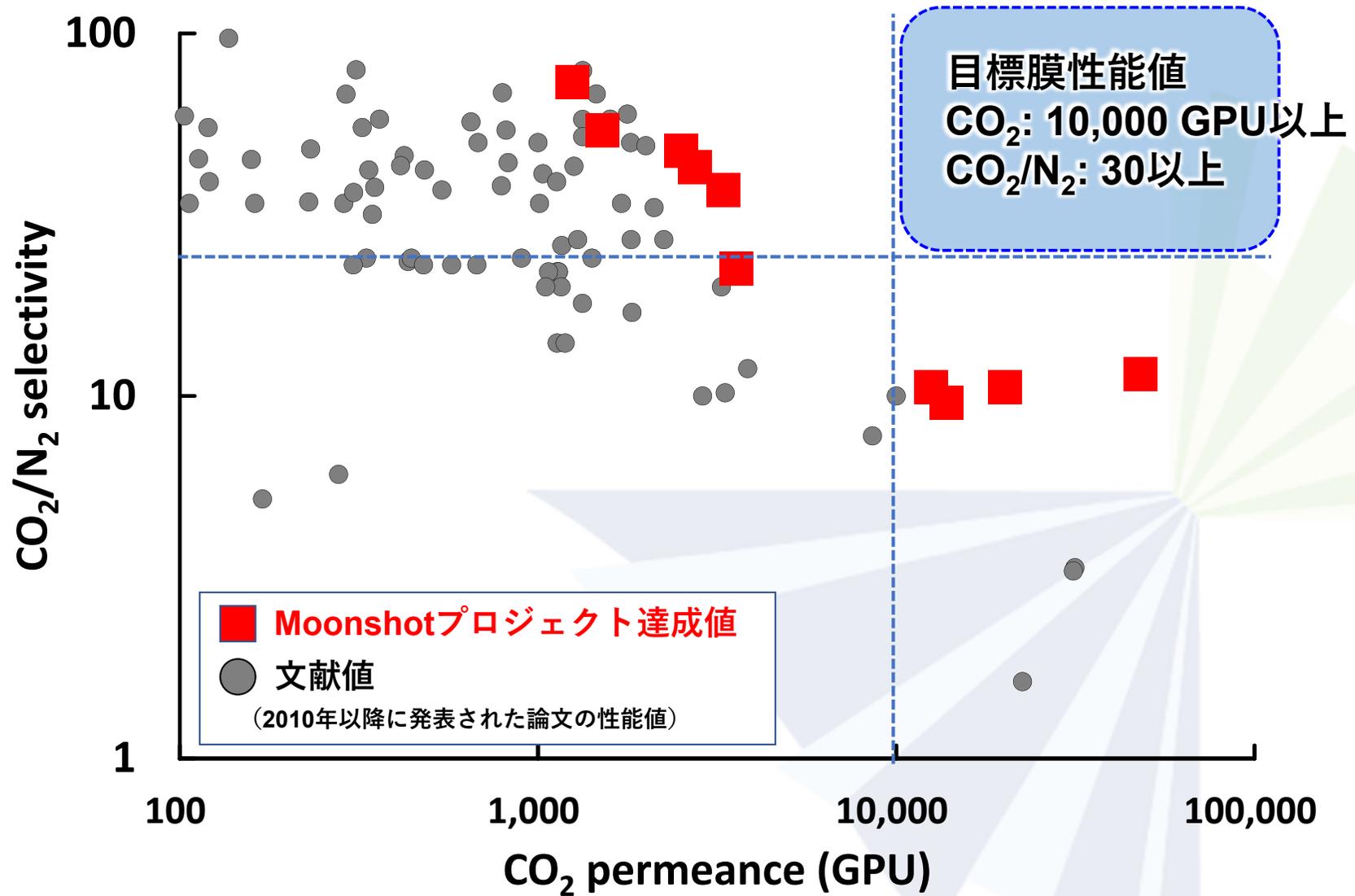
- ・ CO₂親和性分子材料を系統的に探索
→分子厚みのCO₂選択層を支持ナノ膜上に作製

③選択層と支持ナノ膜の接合制御

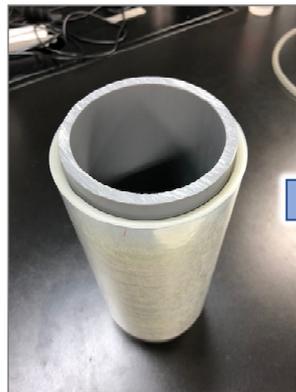
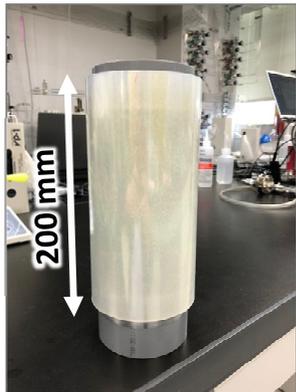
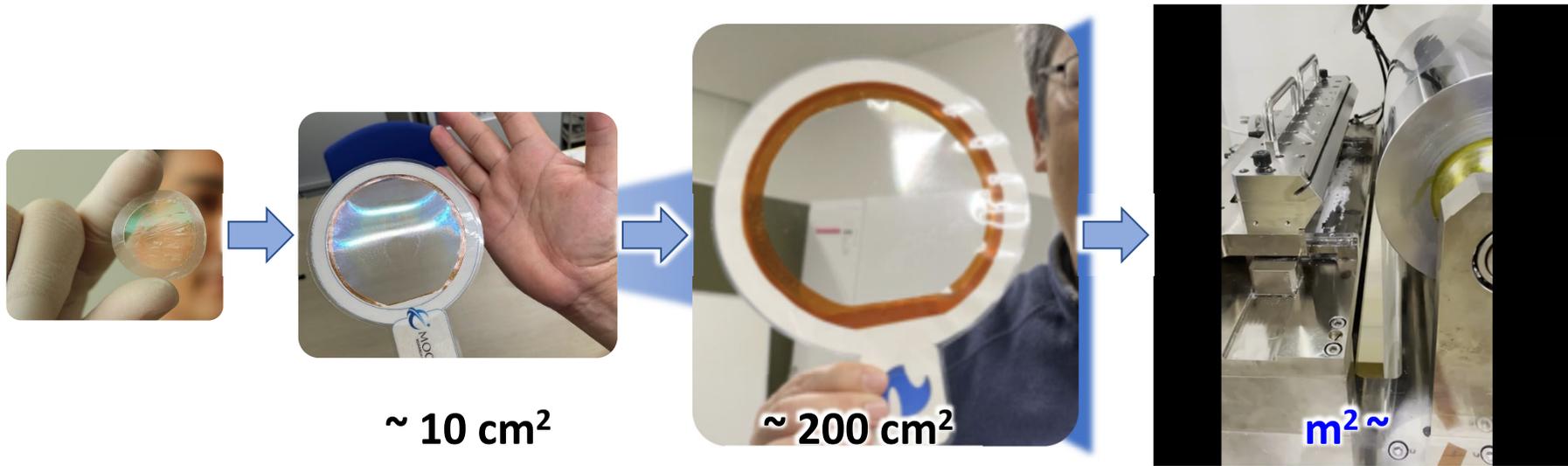
④分離ナノ膜の大面積化



Selyanchyn O., Selyanchyn R., Fujikawa S. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2020

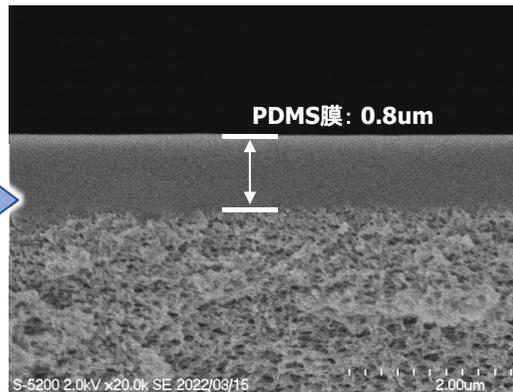


世界トップレベルの膜性能値



10m以上

分離膜（支持膜）のRoll-to-Roll製膜

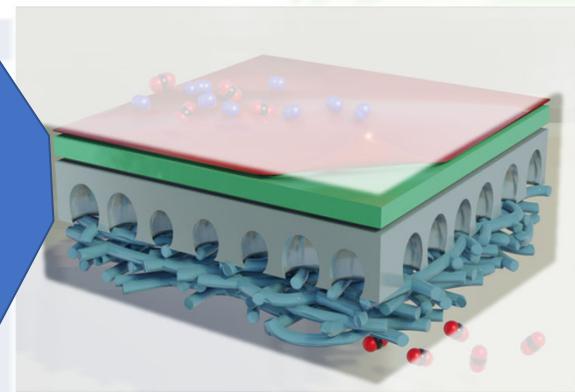


ガス透過度

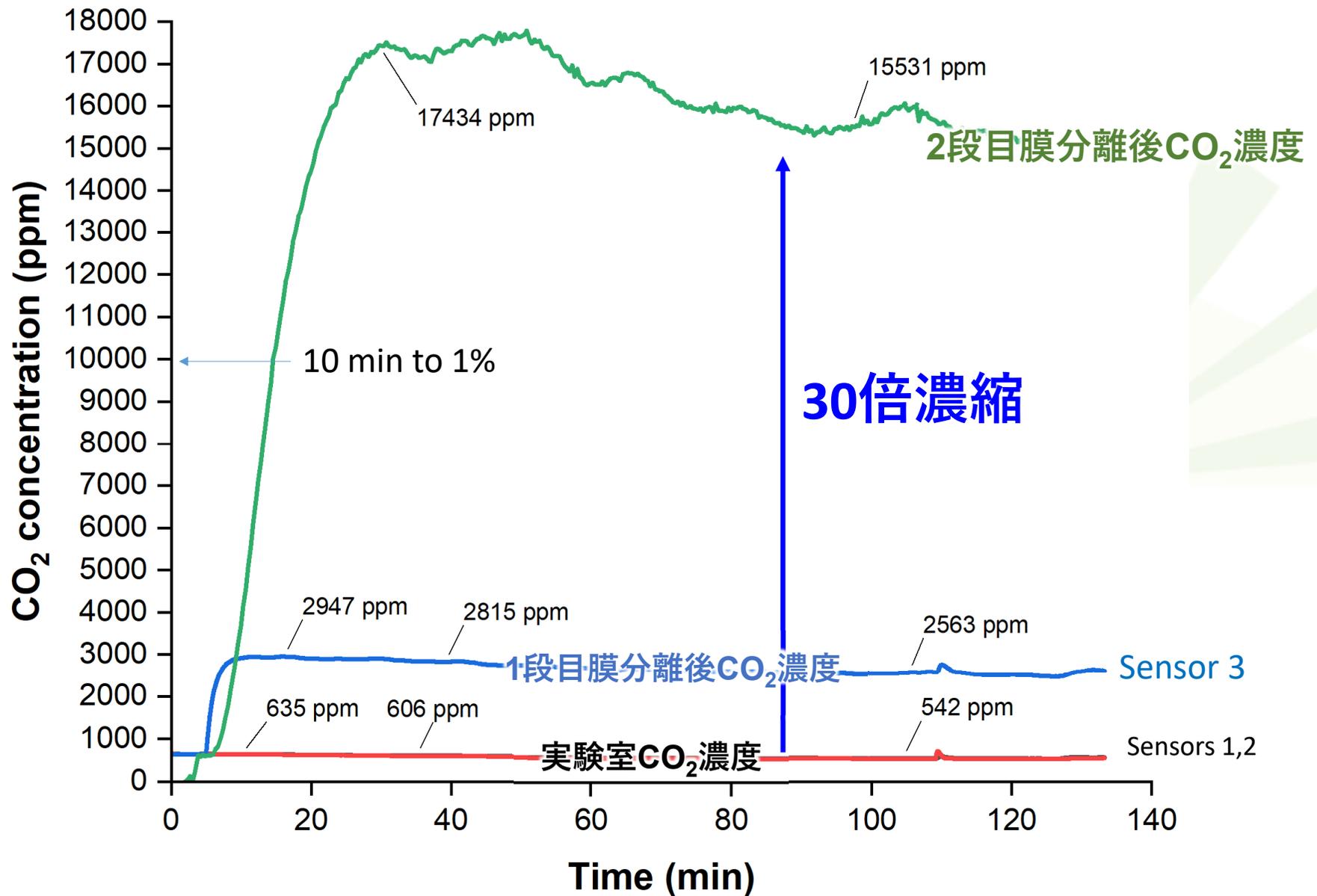
CO₂: 約3600 GPU

N₂: 約450 GPU

O₂: 約780 GPU



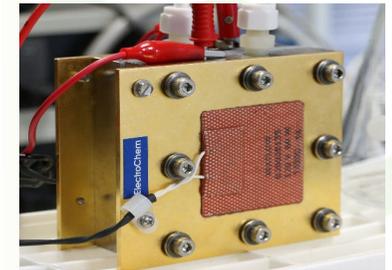
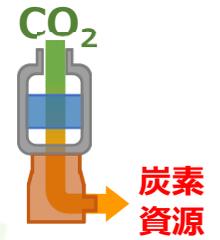
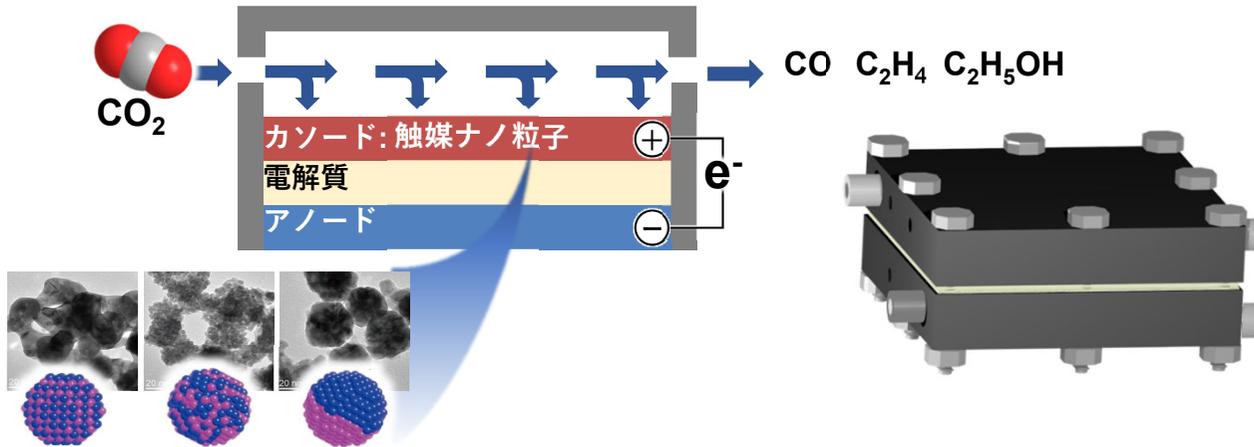
→ 順当な分離膜性能
→ 更なる薄膜化



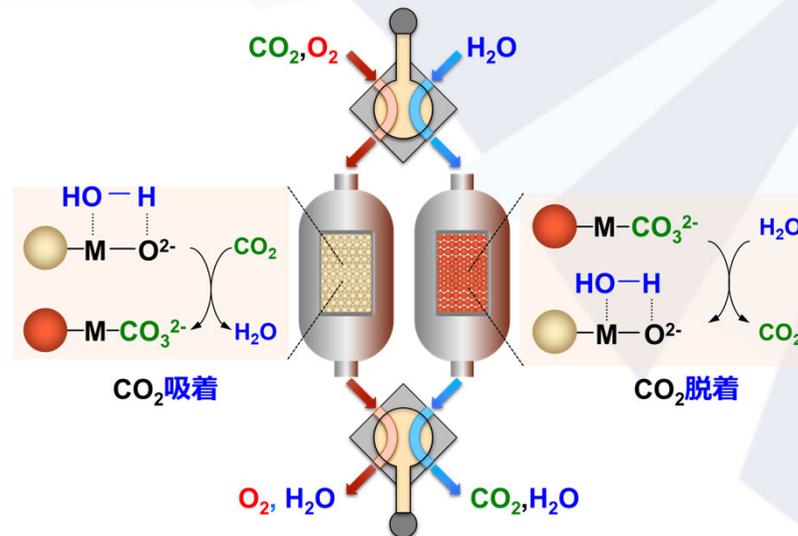
モジュールレベルでのCO₂濃縮を実証

分離ナノ膜で分離・回収されたCO₂混合ガスから炭素資源を製造

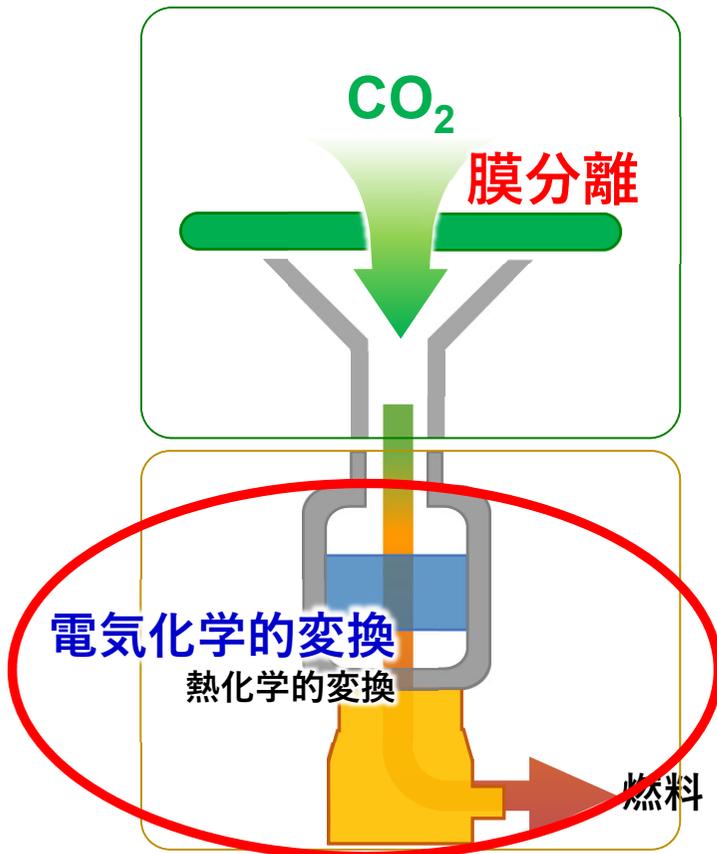
1. 電気化学的変換法による基礎化学原料および燃料製造



2. 熱化学的変換法によるC1化合物製造



DAC-U



CO₂混合ガスから炭素化合物を製造する 電気化学ユニットの開発

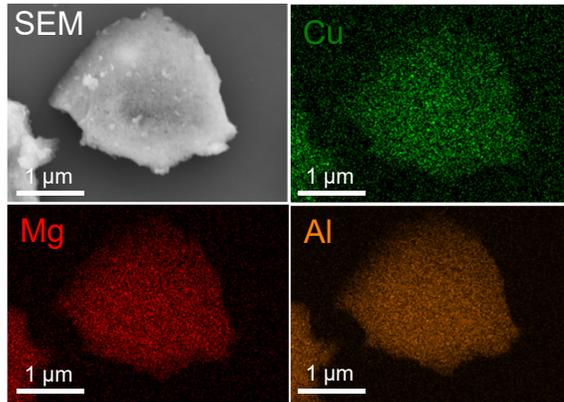


山内美穂 (九州大学・先導物質化学研究所)

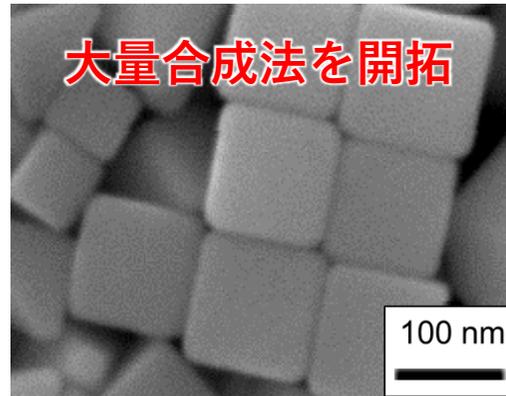
Paul Kenis (Univ. Illinois at Urbana Champaign)

- 選択性のある分離ナノ膜を大面積作製しCO₂を分離回収可能か
- どのような化成品が製造可能か
- O₂混合ガスを原料ガスとしてCO₂を変換できるか？

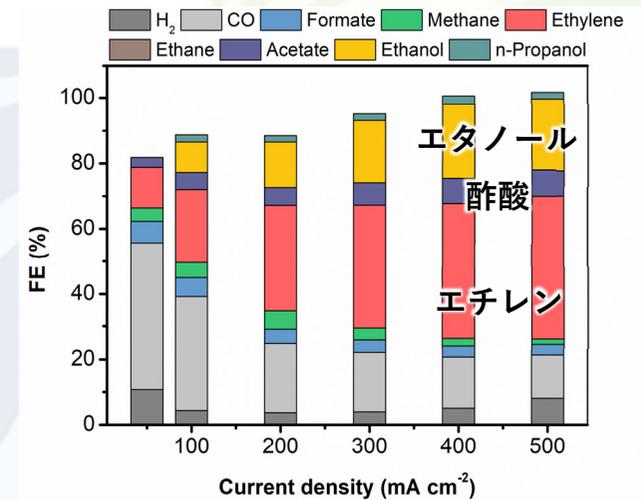
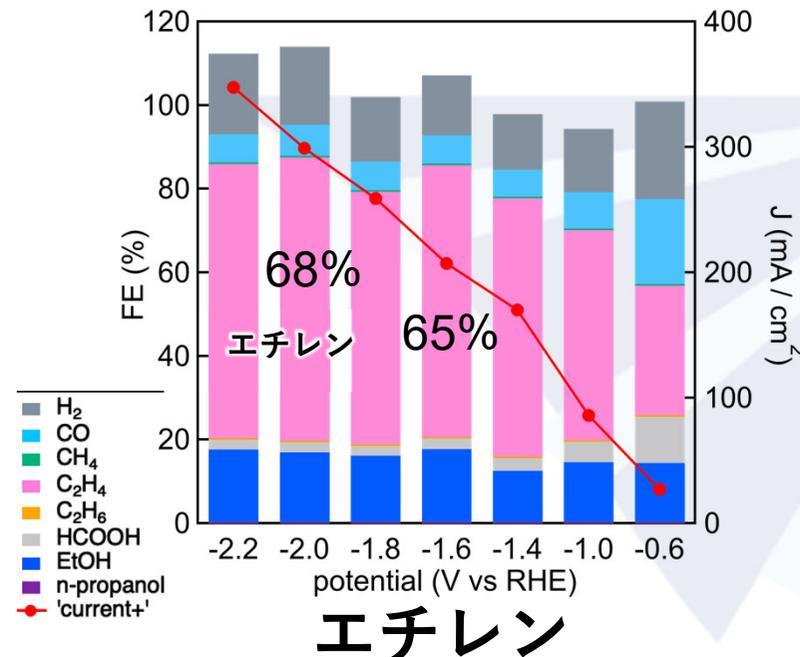
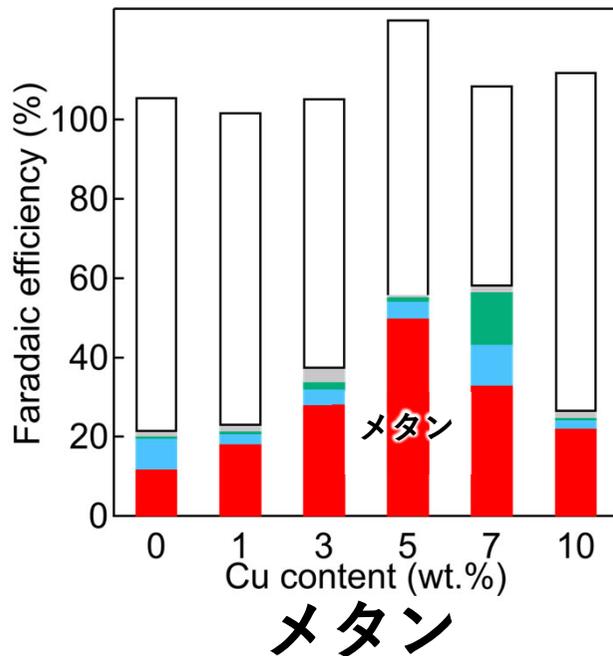
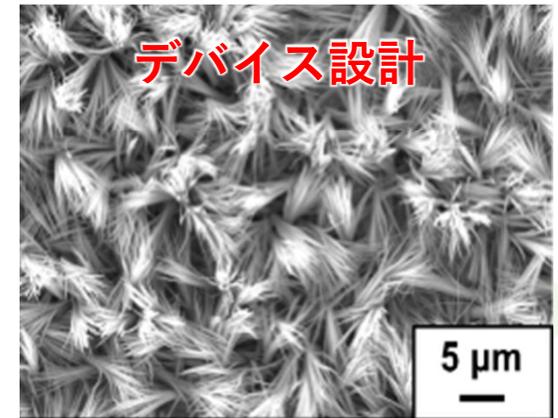
原子スケールCu複合触媒



立方体Cu触媒



針状Cu触媒

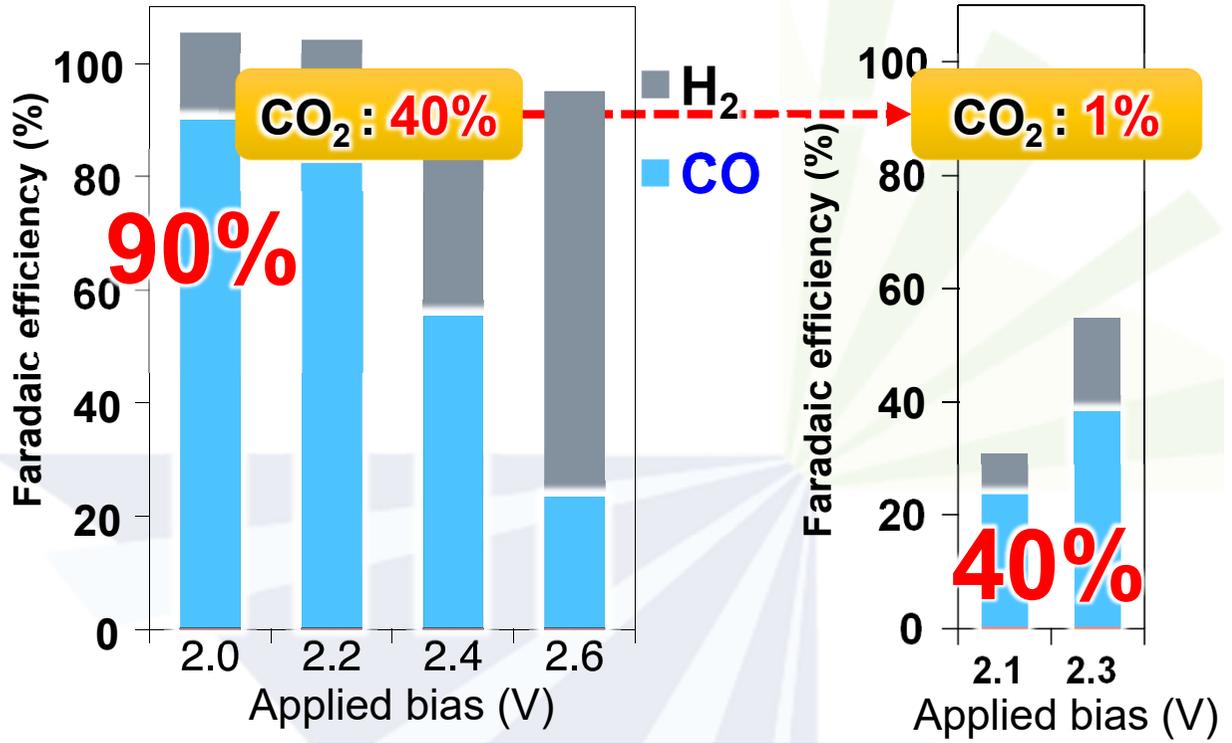
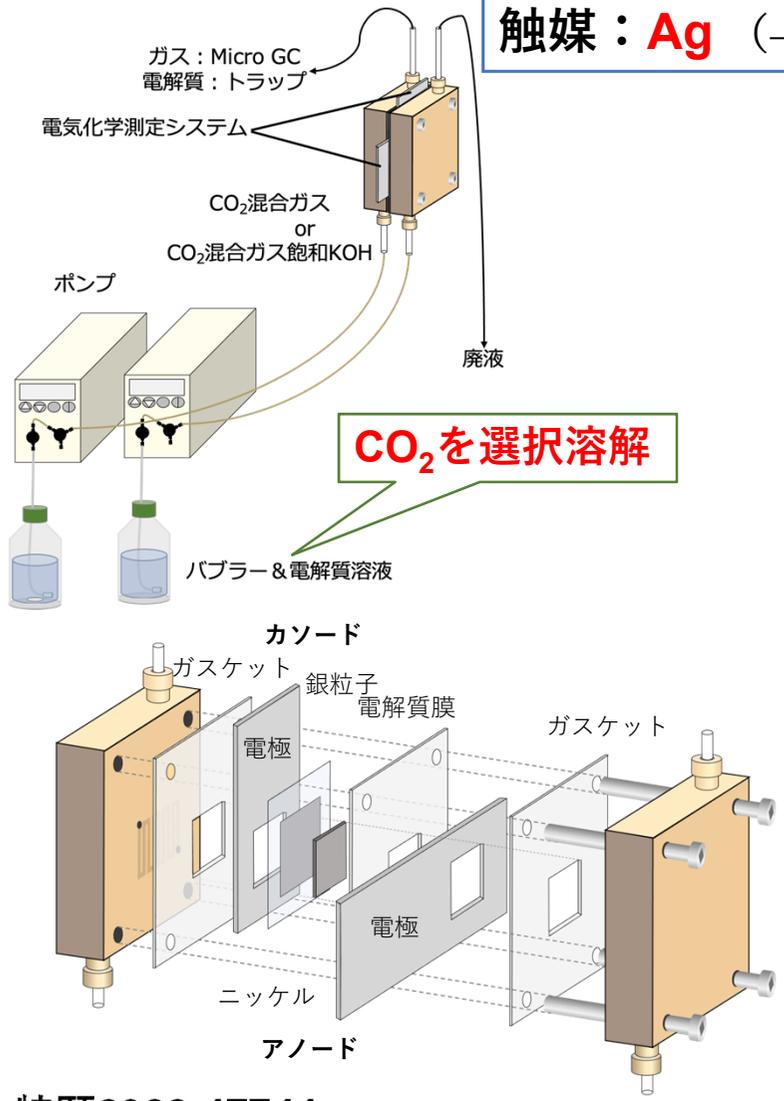


● 「どのような化成品が製造可能か」 → C1, C2化合物を電気化学的に製造可能

～電解質溶解法+新型MEAセル～

“O₂混合CO₂ガスを原料ガスとしてCO₂を変換できるか？”

原料ガス：CO₂(40 or 1%) + N₂(48%) + O₂(12%)
触媒：Ag (→CO製造)



世界初! 低濃度CO₂からの合成ガス製造 原理実証

2024目標 極めて高いエネルギー変換効率η: 53%

$$\eta: \text{エネルギー変換効率} = \frac{\text{理論電位}}{\text{印加電位}} \times FE$$

特願2022-47744

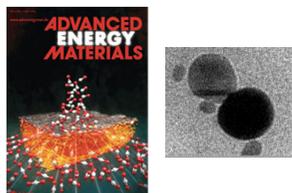
COとH₂のみの製造が可能



Paul Kenis (Professor)
University of Illinois at Urbana Champaign(UIUC)

多様な触媒を用いた電気化学的 CO₂変換システムの構築

Ag NPs



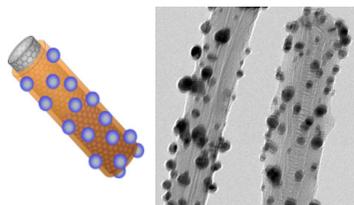
Adv. Energy Mater., 2013

Bimetallic Cu-Pd NPs



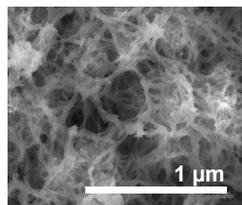
J. Am Chem. Soc., 2017

Au on poly CNTs



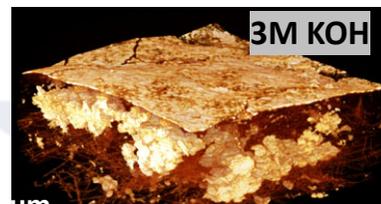
ChemPhysChem, 2017

CuAg-wire

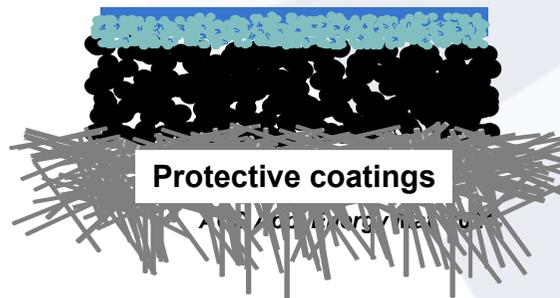


J. Am Chem. Soc., 2018

電極の耐久性向上



ACS App. Mater. Interface, 2021



独自の高性能電解セル の設計・制作

Flow Cell



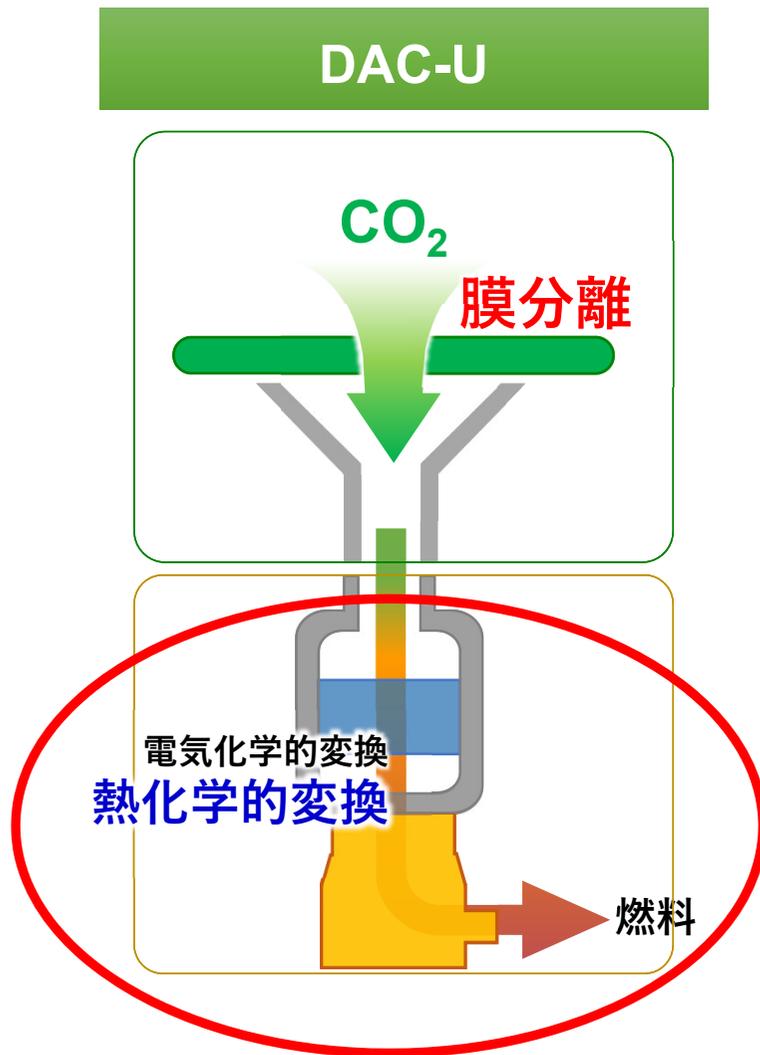
↓ Moonshot!



MEA Stack

Moonshotプロジェクト開発触媒の性能を発揮する電解セルの設計とプロセス確立

DACから得られたCO₂混合ガスから炭素化合物を製造する熱変換ユニットの開発



清水研一 (北海道大学・触媒科学研究所)

DACからのCO₂混合ガスをCH₄・COに変換

高い技術的挑戦性

酸素が混合したCO₂混合ガスからCO, CH₄をつくり分ける
→世界的にもほぼ例がない

H₂をO₂と反応させずに、CO₂と反応させる

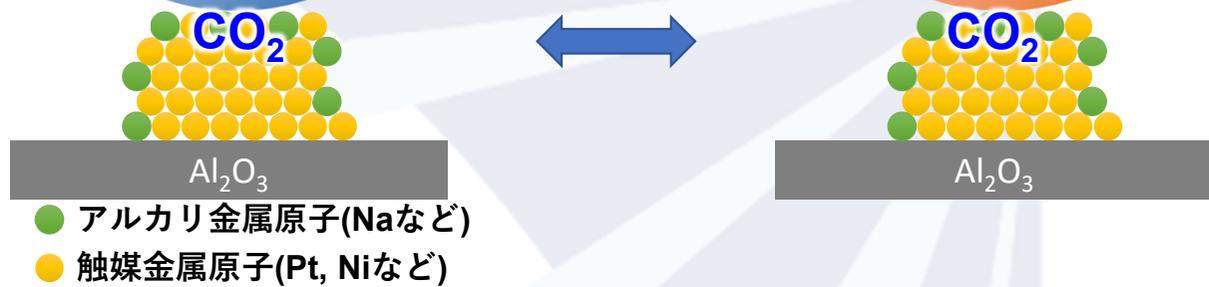
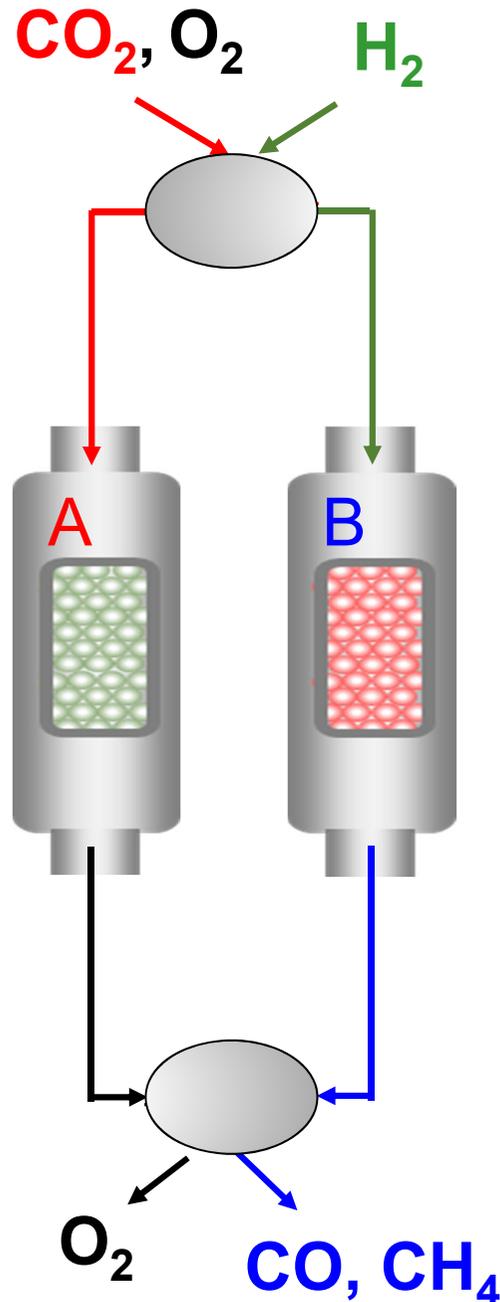
O₂除去とCO₂水素化

■ O₂除去
(+触媒表面へのCO₂吸蔵)

CO₂, O₂ → O₂

■ 水素化反応

H₂ → CO, CH₄



“直接大気を使えないのか？”

CO₂吸蔵速度→高濃度CO₂が効率的
高濃度CO₂の導入
→単位時間当たりのCO₂吸着量増加
→切り替え時間の短縮化→全体効率が向上

➡分離膜によるCO₂濃縮は重要

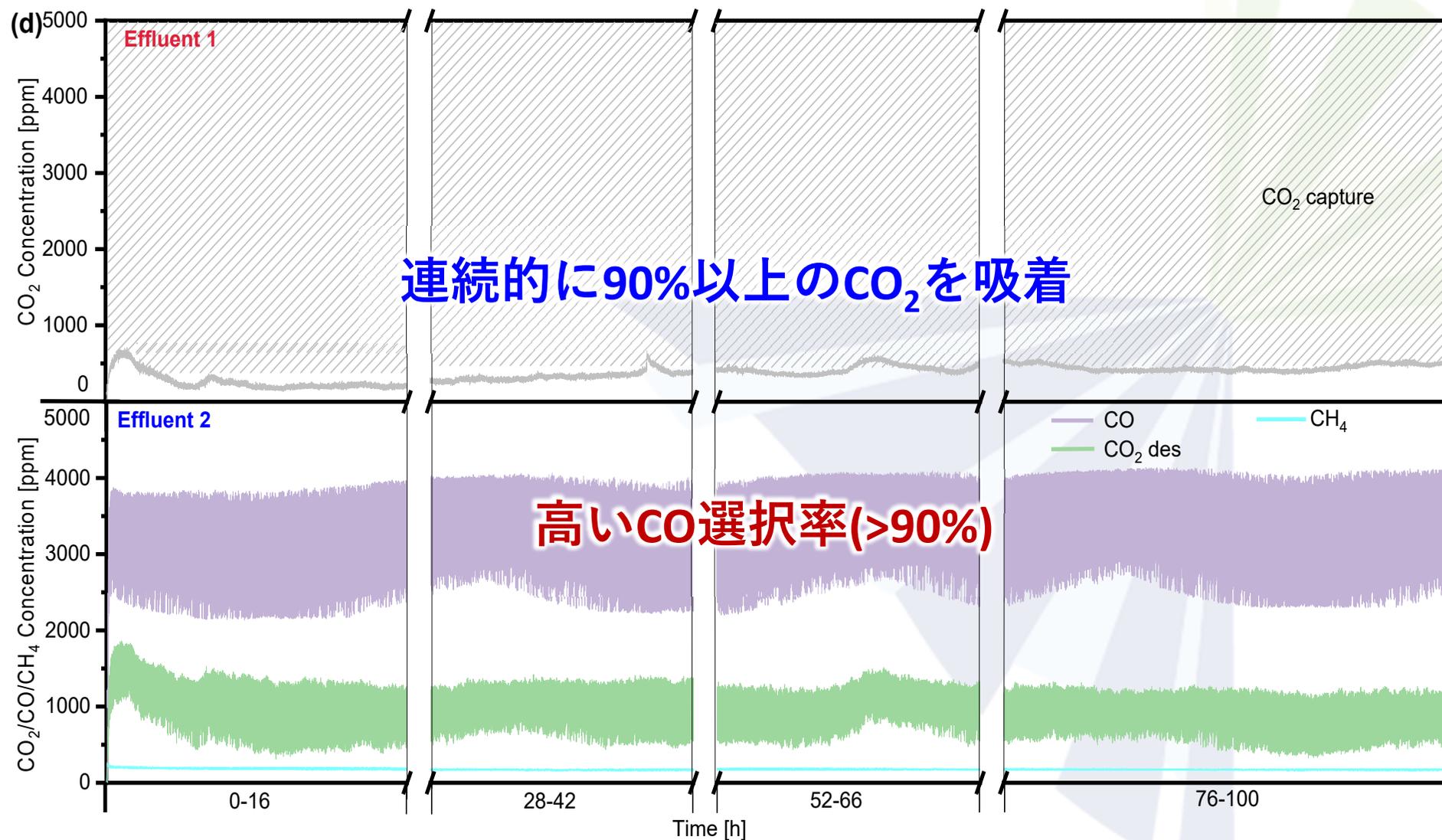
触媒: **Pt/Na/Al₂O₃**

触媒量: 300 mg, 反応温度: 350°C

ガス総流量: 100 mL/min

吸蔵ガス: **0.5%CO₂/10%O₂/N₂**

還元ガス: H₂/100%



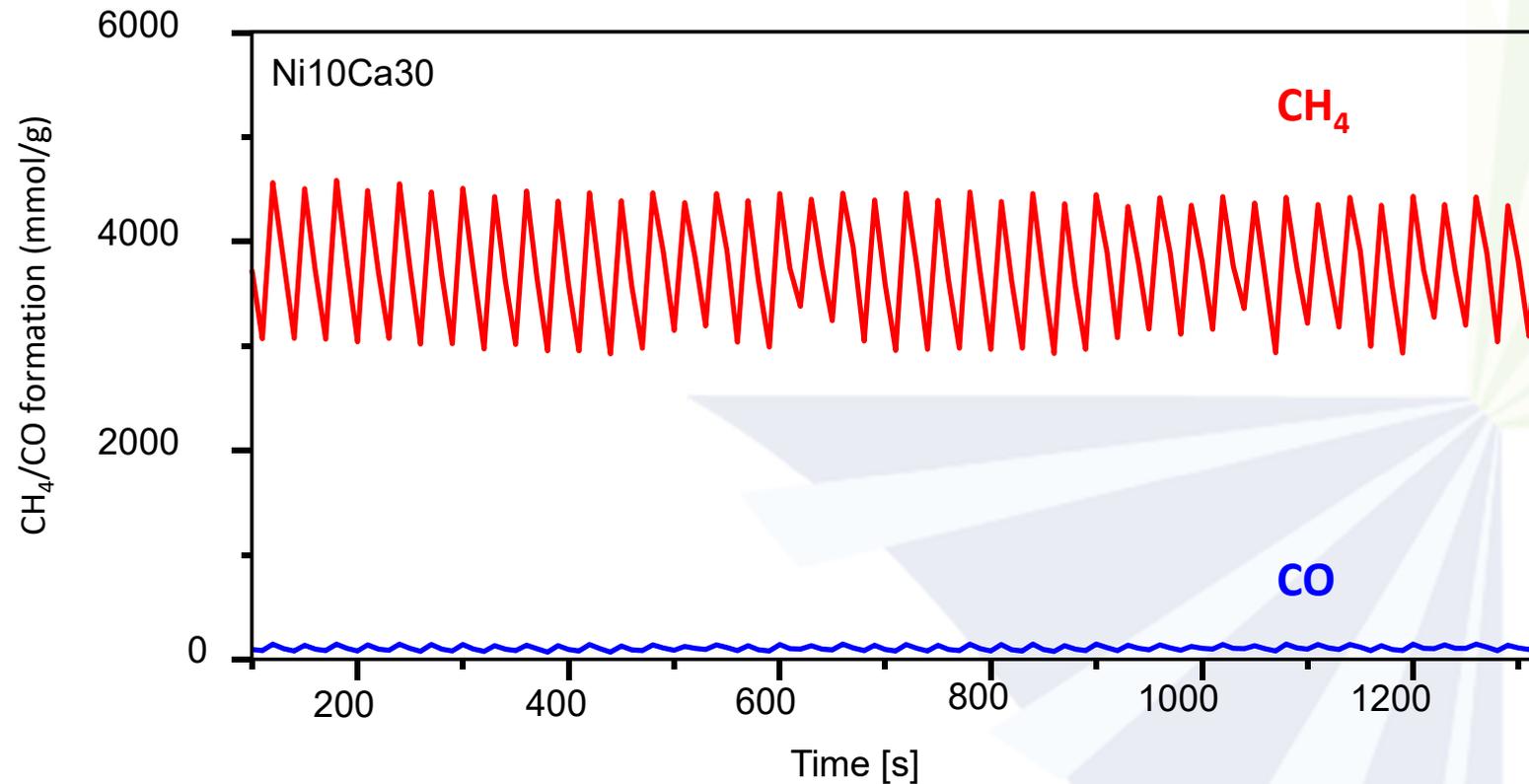
触媒: **Ni/Ca/Al₂O₃**

触媒量: 300 mg, 反応温度: 250-500°C

ガス総流量: 100 mL/min

吸蔵ガス: **0.5%CO₂/10%O₂/N₂**

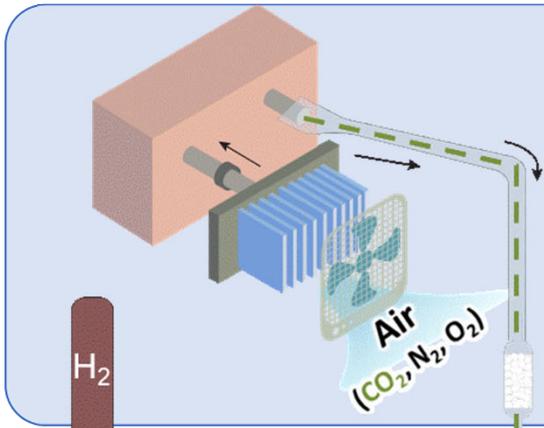
還元ガス: H₂/100%



- 導入CO₂の80%を連続吸蔵
- 吸蔵CO₂の約**80%**をCH₄に変換
- 高選択的に**CH₄**が生成

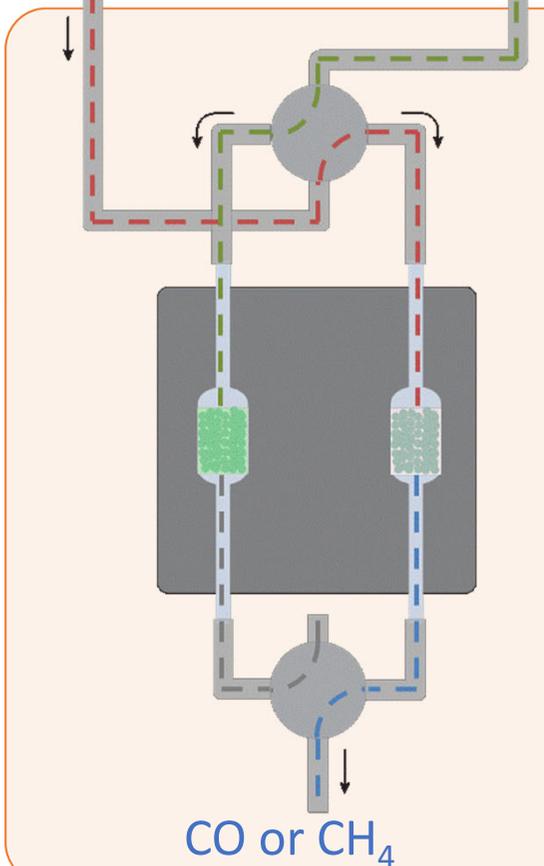
	USA (Farrauto)	Spain (Gonzalez-Velasco)	AIST (Kuramoto)	本研究
サイクル数	50	16	1	3000
CH ₄ 生成速度 (mmol/g/h)	0.4	1.3	0.8	1.1
温度(°C)	350	400	450	350
反応器	単槽式 (交互流通)	単槽式 (交互流通)	単槽式 (交互流通)	複槽式 (連続流通)
文献	<i>Fuel</i> 2022 , 320, 23842	<i>J. CO₂ Util.</i> 2018 , 27, 390	<i>ACS Sustain. Chem. Eng.</i> 2021 , 9, 3452	

世界トップレベルの性能



膜分離を用いた Direct Air Capture (DAC)

大気中のCO₂を濃縮(400 ppm → 2000 ppm)



連続的CO₂吸蔵・還元 (CO₂ Capture & Reduction (CCR))

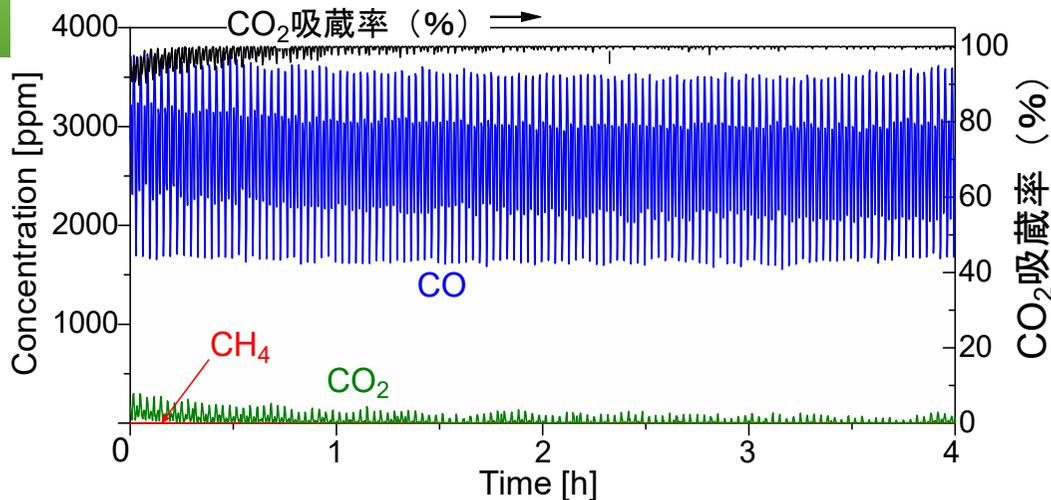
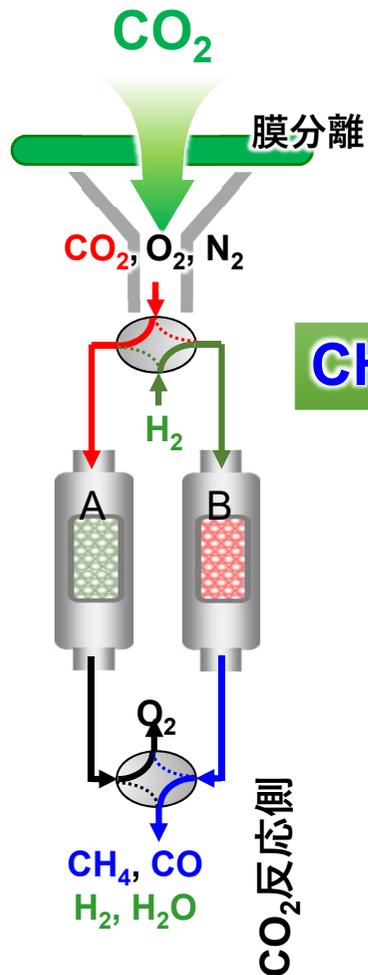
利点

- ✓ 濃縮CO₂/O₂/N₂混合ガスを「直接」、
「一段で」CH₄, COに変換

課題点

- ✓ 高選択性、低温で反応を進行する触媒
が必要

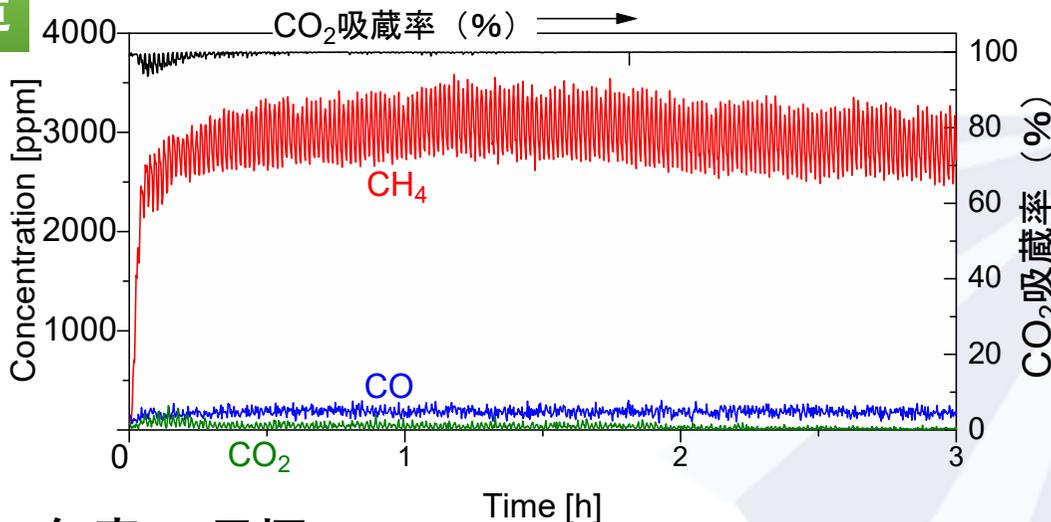
CO製造



選択性>98%
転化率>90%

反応条件
触媒量：500 mg
反応温度：450°C
吸蔵ガス総流量：100 mL/min
H₂流量：100 mL/min
バルブ切り替え：30 sec毎

CH₄製造



選択性:>90%
転化率:>90%

反応条件
触媒量：300 mg
反応温度：300 °C
DAC-Uガス総流量：500 mL/min
H₂ガス総流量：100 mL/min
バルブ切り替え：1 min毎

2022年度KPI目標

「CO₂混合ガスからCO, CH₄変換を実証」を達成

(特許出願済み, 論文準備中)

課題：

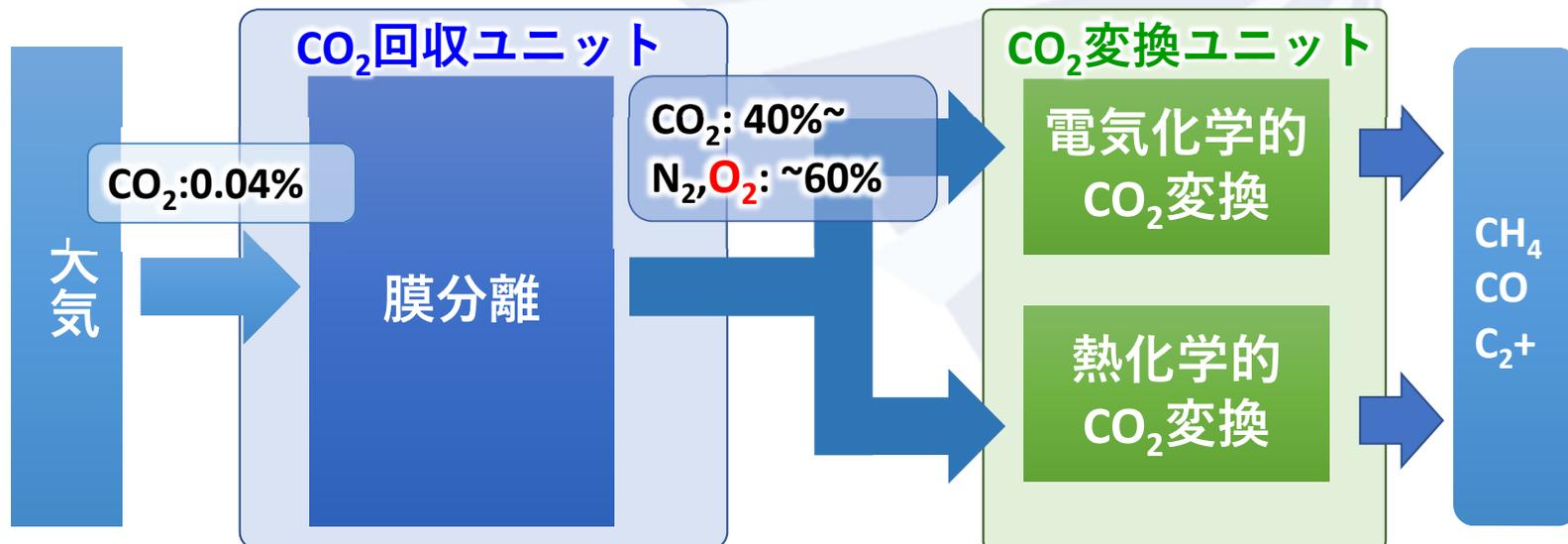
- H₂導入条件の最適化
- リサイクルシステムの導入による未反応H₂の再利用化

- 選択性のある分離ナノ膜を大面積作製しCO₂を分離回収可能か
→可能
- O₂混合ガスを原料ガスとしてCO₂を変換できるか？
→O₂混入した原料ガスでもCO₂変換可能
- どのような化成品が製造可能か
→CO, CH₄, C₂が製造可能

2022年度KPI

高いCO₂選択性を示す分離膜基本材料を選定する。

CO₂混合ガスからのCO, CH₄, C₂H₄などの基礎化成品への変換を実証





**地産地消型
炭素資源循環社会**

