

第 1 回 平成 2 7 年度二酸化炭素
回収・貯留分野 評価検討会（2）

資料 6－2

（二酸化炭素回収技術高度化事業 終了時評価）

二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業

評価用資料

平成 2 7 年 1 1 月 2 0 日

経済産業省産業技術環境局地球環境連携・技術室

次世代型膜モジュール技術研究組合

目 次

1. 事業の目的・政策的位置付け	3
1-1 事業の目的	3
1-2 政策的位置付け	4
1-3 国の関与の必要性	8
2. 研究開発目標	10
2-1 研究開発目標	10
2-1-1 全体の目標設定	14
2-1-2 個別要素技術の目標設定	15
3. 成果、目標の達成度	16
3-1 成果	16
3-1-1 全体成果	
3-1-2 個別要素技術成果	
3-1-3 特許出願状況等	
3-2 目標の達成度	49
4. 事業化、波及効果	52
4-1 事業化の見通し	52
4-2 波及効果	52
5. 研究開発マネジメント・体制・資金・費用対効果等	54
5-1 研究開発計画	54
5-2 研究開発実施者の実施体制・運営	55
5-3 資金配分	63
5-4 費用対効果	64
5-5 変化への対応	64
6. 中間評価結果	66

1. 事業の目的・政策的位置付け

1-1 事業の目的

化石燃料は今後とも我が国の主要なエネルギーソースであり、持続的な経済成長と地球温暖化防止の観点から、化石燃料の利用に伴う温室効果ガス排出削減技術の研究開発が求められている。大規模発生源から分離・回収された二酸化炭素を地下深部の塩水性帯水層（以下「帯水層」という。）に貯留する技術開発が、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つとして期待され、先進国を中心に盛んに行われている。

気候変動に関する政府間パネル（IPCC）が2005年にまとめた「二酸化炭素回収・貯留（CCS）に関する特別報告書」では、世界全体におけるCO₂地中貯留のポテンシャルが約2兆トンと大きく、70年分にも相当すると見込まれている。また、最近公開されたIPCC第5次評価報告書（AR5）第3作業部会の報告『気候変動2014－気候変動の緩和』では、2100年までに大気中のGHG濃度をCO₂換算で約450ppmに抑えるために、再生可能エネルギー、原子力エネルギー並びにCCSを伴う化石エネルギーまたはCCS付きバイオエネルギー（BECCS）を採用したゼロカーボン及び低炭素エネルギーの供給比率が2050年までに2010年の3倍から4倍近くになるシナリオが必要であると報告されている。

国際エネルギー機関（IEA）の「エネルギー技術展望2012」では、CCSは、今後も長期的に極めて重要な役割を果たすとし、産業部門による大幅なCO₂排出量削減目標の達成を可能にする有望な技術であるとしている。さらに長期的に気温上昇を2℃に抑えるシナリオにおいて、2050年までのCO₂累積削減量の最大20%を占めると試算され、もしCCSを放棄すれば、必要とされる電力分野の追加投資額は40%増加し、今後40年間で総額2兆ドルに達するとしている。

我が国においても、地球温暖化対策としてCCSの実用化に向けた対応を速やかに進めることが求められており、CCSの実用化に資するため、コストを低減する技術、特に全コストの6割以上を占めるCO₂の分離・回収技術の高度化・低コスト化が不可欠であり、技術開発の加速化が必要とされているところである。

「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」では圧力を有するガス源であるIGCC等から従来技術の3分の1程度の1,500円/t-CO₂以下でCO₂を分離・回収する技術の確立を目指す。合わせて、1,000円/t-CO₂以下でCO₂を分離・回収する技術を確認する。

事業概要

圧力を有するガスから効率良く低コストでCO₂を分離・回収する技術を開発する目的で、「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」を実施した。

ここでは、膜素材の CO₂ の透過性や選択性などの高性能化を図るとともに、膜の連続製造技術の開発や膜モジュールの耐圧・耐久化、大型化を図るなど実用化に向けて、分離膜技術の確立、実機膜モジュールの開発、膜システムの開発を実施した。

(1) 分離膜技術の確立

分子ゲート機能CO₂分離膜の技術研究開発における「単膜の基本性能の確認」を受けて、膜モジュール性能が発揮できるように分離膜の改良を行いつつ、分子ゲート機能CO₂分離膜の実用化に向けて実システムで要求される耐不純物性、耐乾燥性、耐圧性、耐久性等のプロセス適合性を確立する。合わせて、1,000円/t-CO₂以下でCO₂を分離・回収する技術を確認する。

(2) 実機膜モジュールの開発

連続安定製膜に必要な要素技術を確認して、実機膜モジュールに供する分離膜の安定製造を可能とする。

(3) 膜分離システムの開発

膜分離システムの適用調査、プロセス検討データの取得により、開発した分離膜モジュールに最適なシステム検討を行う。

1－2 政策的位置付け

本プロジェクトは、二酸化炭素回収・貯留（CCS）実用化に当たり問題となるCO₂分離・回収コストを大幅に低減する技術の開発を行うものであり、G8 北海道洞爺湖サミット首脳宣言、エネルギー基本計画、地球温暖化対策基本法案において、以下のように位置付けられている。

○G8 北海道洞爺湖サミット首脳宣言（平成 20 年 7 月 8 日）

我々は、2020 年までに CCS の広範な展開を始めるために、各国毎の様々な事情を考慮しつつ、2010 年までに世界的に 20 の大規模な CCS の実証プロジェクトが開始されることを、強く支持する。

○エネルギー基本計画（平成 22 年 6 月 18 日閣議決定） （火力発電の高度化）

2020 年頃の CCS の商用化を目指した技術開発の加速化を図るとともに、今後計画される石炭火力の新增設に当たっては、CCS Ready の導入を検討する。また、商用化を前提に、2030 年までに石炭火力に CCS を導入することを検討する。

○地球温暖化対策基本法案（平成22年10月8日閣議決定）

（革新的な技術開発の促進等）

第19条 国は、地球温暖化の防止及び地球温暖化への適応に資する技術の高度化及び有効活用を図るため、再生可能エネルギーの利用、安全の確保を基本とした原子力発電、エネルギーの使用の合理化、燃料電池、蓄電池並びに二酸化炭素の回収及び貯蔵に関連する革新的な技術その他の地球温暖化の防止及び地球温暖化への適応に資する技術の開発及び普及の促進のために必要な施策を講ずるものとする。

また、本事業は平成22年度までは経済産業省の定める施策名「30 温暖化対策」の中で「温室効果ガスを大きく削減する革新技術」の一部として位置付けられ（図1-1）、平成23年度以降は経済産業省の定める施策名「3 資源エネルギー・環境政策」の中の「環境政策」において「温暖化対策に係る革新技術」の一部として位置付けられている（図1-2）。

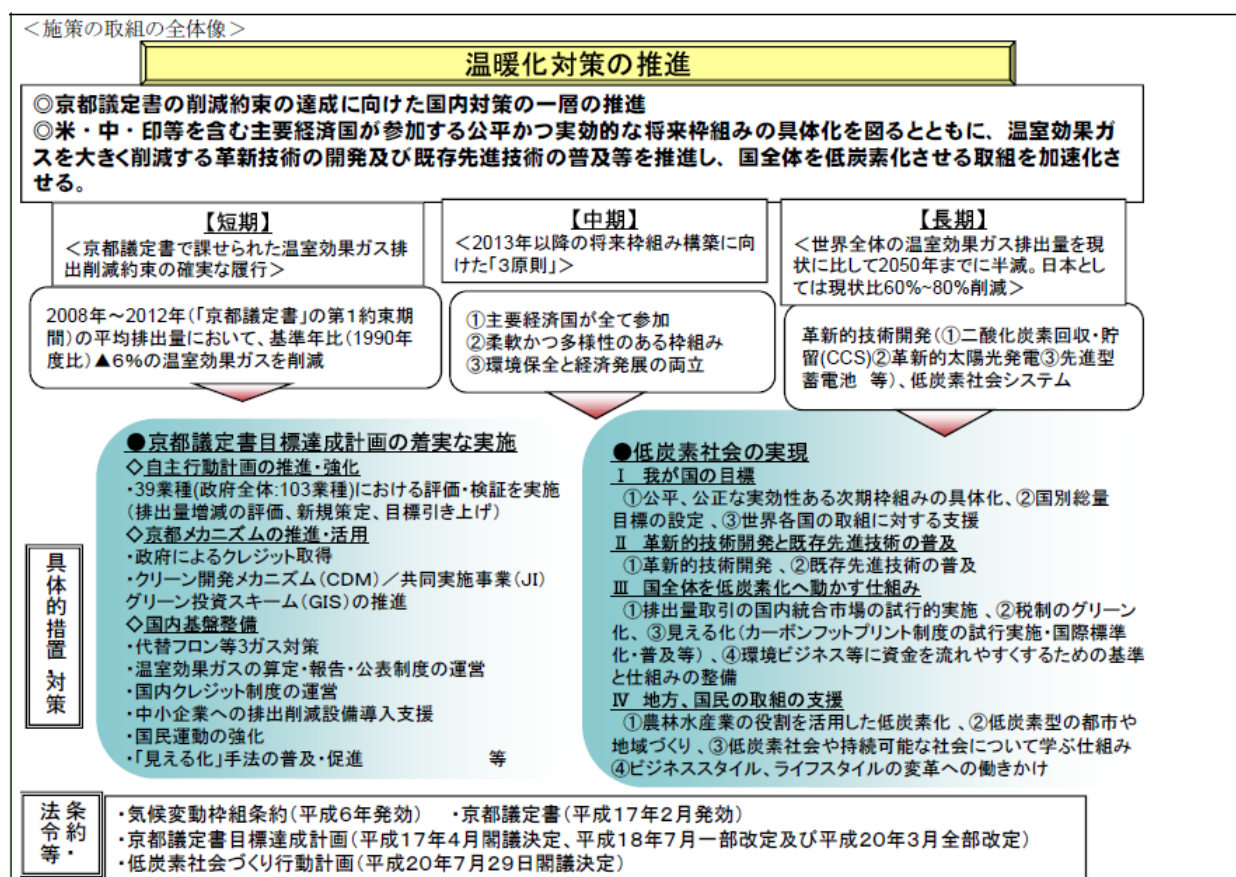


図1-1 平成22年度施策評価書(事後)に見られる温暖化対策の推進

「資源エネルギー・環境政策」（抜粋）

【環境政策】に係る政策軸の概要

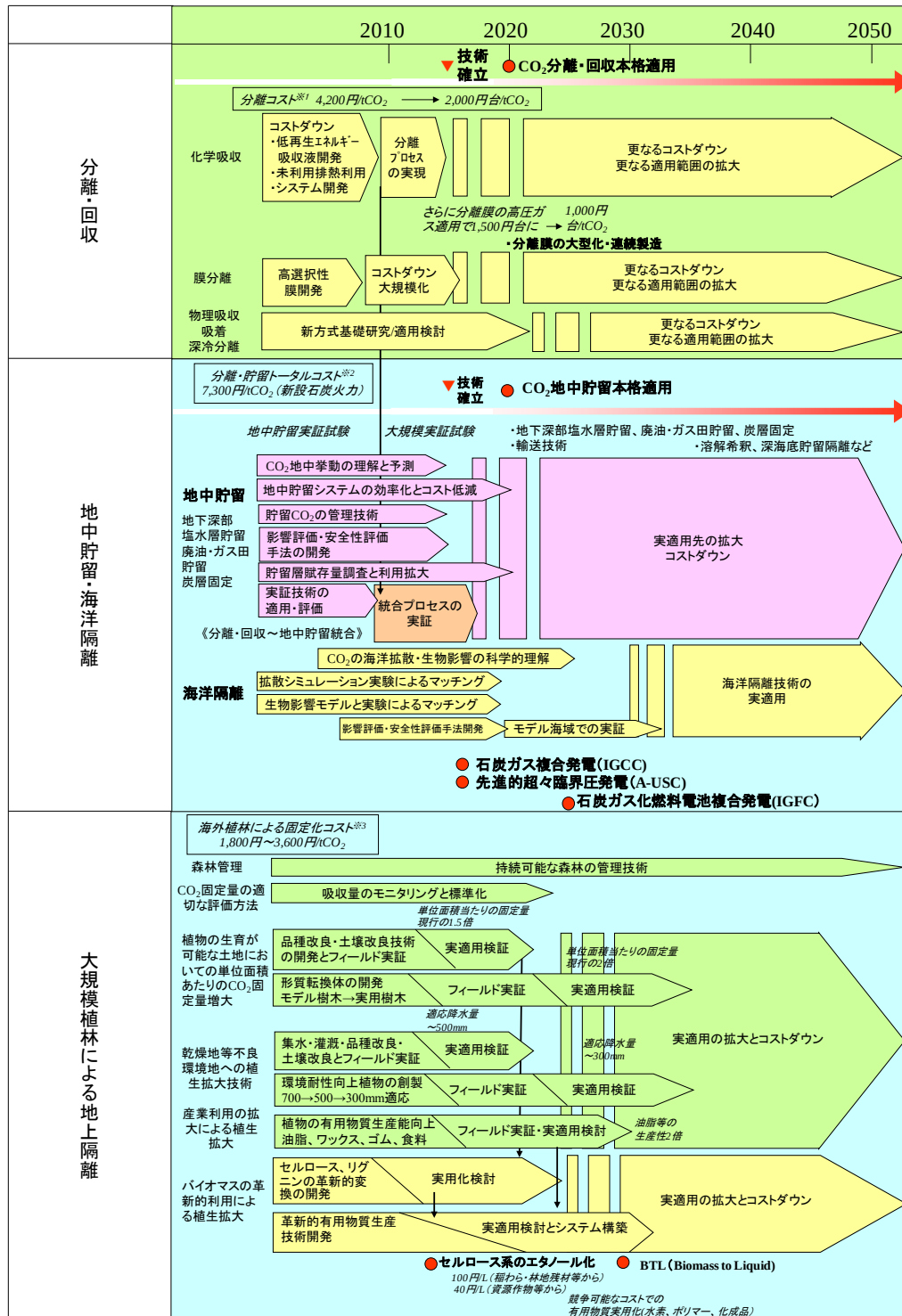
○温暖化対策

温室効果ガスの排出削減に向けて、短期的には温室効果ガス排出削減に資する事業活動の促進、技術の開発・普及の推進、京都メカニズムの活用等によって「京都議定書」の6%削減約束を達成するとともに、中期的には2020年から発効するすべての国が参加する将来枠組み構築に向けた国際交渉への対応と国内対策の検討、長期的には革新的な技術の開発と既存先進技術の普及を通じて地球全体での温室効果ガスの排出削減を実現し、将来にわたって我が国が地球温暖化問題に着実に対応しつつ、国際的に競争力ある経済活動を持続させることを目的とする

図 1-2 平成 24 年度施策評価（事後）

更に、経済産業省では、技術開発を推進するにあたり「技術戦略マップ」を策定している。技術戦略マップは、新産業の創造やリーディングインダストリーの国際競争力を強化していくために必要な重要技術を絞り込むとともに、それらの技術目標を示し、かつ研究開発以外の関連施策等を一体として進めるプランを総合的な技術戦略としてとりまとめたもので、いわば、産学官の研究開発投資の戦略的実施のナビゲーターともいうべき俯瞰的ロードマップとなっている。平成 22 年 6 月に取りまとめた「技術戦略マップ 2010」の「環境」領域において設定された 4 つの政策目標のうちの「CO₂固定化・有効利用分野」の技術ロードマップにおいて、本プロジェクトは分離・回収技術として位置付けられている（図 1-3）。

CO₂固定化・有効利用分野の技術ロードマップ



※1 分離回収: 新設石炭火力 (830MW)、回収量: 100万t-CO₂/年、7MPaまでの昇圧含む、蒸気は発電所の蒸気システムから抽出 [コストベース: 2001年]
 ※2 地中貯留: 上記分離回収コスト+パイプライン輸送20km+圧入 (昇圧15MPa、10万t-CO₂/年・井戸) [コストベース: 2001年]
 ※3 植林: 植林周期7年伐採+萌芽再植林、バイオマス生産量20m³/ha・年、植林管理費17-31%、用地リース費: 50\$/ha・年)

<出典: 技術戦略マップ 2010>

図 1-3 CO₂固定化・有効利用分野の技術ロードマップ

1－3 国の関与の必要性

1－3－1 背景

地球温暖化問題は、その予想される影響の大きさや深刻さに鑑み、人類の生存基盤に関わる最も重要な問題の一つとなっている。我が国は、平成 17 年 2 月に発効した地球温暖化対策のための国際的な枠組である京都議定書を締結し、6%削減を達成する国際的な約束を果たすべく取り組みを進めている。京都議定書第 1 約束期間以降の国際的な枠組については現在交渉中であるが、将来にわたっても我が国が地球温暖化問題に着実に対応し、中長期的には世界の温室効果ガスを大幅に削減させる必要がある。

こうした状況の下、二酸化炭素回収・貯留（CCS）技術は、大規模に温室効果ガスを隔離する手法として、世界各国で注目され、実証試験や実用化検討が行われており、わが国でも 1,461 億トンの概算貯留可能量、世界全体では 2 兆トンの貯留可能量が算出されている有望な CO₂ 隔離技術と位置づけられている。なお、CCS 実用化に当たっては、全コストの 6 割以上を占める CO₂ 分離・回収コストの大幅な低減が不可欠である。

1－3－2 CO₂ 分離・回収技術に対する国の関与の必要性

CCS は、生産性向上、省エネルギーなどに寄与せず、利益の向上に資さない地球温暖化対策に特化した技術である。地球温暖化自体はいわゆる外部不経済であり、地球温暖化のための対策に特化した技術である CCS は、市場原理だけでは、その導入を図ることは不可能である。

CCS の導入を図るためには、財政支援、税制優遇、規制など、導入を促進するための制度的仕組みが必要である。しかしながら、CCS のコストが高い現状では、財政支援、税制優遇を実施した場合には、多額の政策的経費が必要となり、規制を実施した場合には、電力、鉄鋼、セメント業界等の民間企業に過度の負担を強いることになり、我が国産業競争力の低下、産業の海外移転による産業の空洞化などを惹起する恐れがある。

このため、CCS の導入を図るためには、まずは CCS のコストを低減することが不可欠であるが、制度的仕組みがなく CCS 導入のインセンティブがない中で、民間企業に、コスト低減のための研究開発の実施を期待することは不可能である。したがって、外部不経済である地球温暖化への対策に特化した CCS のコスト低減のための技術開発は、民間のみで行うことは期待できないことから、国が主導してこれらの技術開発を実施し、コスト低減の見通しを示すことが必要である。なお、CO₂ 回収技術として吸収液技術が一部実用化されているものの、

工業用ドライアイスや飲料用 CO₂、尿素等化学製品の原料など限られた市場、用途しか形成されておらず、これでは民間企業には革新的、挑戦的な技術開発によるコストダウンに対するインセンティブは働かない。

また、制度的仕組みの導入によってある程度市場が想定できるようになったとしても、新規技術の実用化においては、各要素技術に対する信頼性、諸所の基礎的なエンジニアリングデータの確保が必要である。そのためには実ガスを用いた実用化試験データの取得が不可欠であり、このようなデータなしに企業が新技術を導入するか否かの判断をするにはリスクを伴うため、良い技術であっても採用されない可能性がある。したがって国が主導して実ガス試験レベルまでの技術開発を行い、次の段階での民間企業の補助事業へとつなげる技術移転をスムーズに行う必要がある。

2. 研究開発目標

2-1 研究開発目標

二酸化炭素回収・貯留（CCS）は地球温暖化対策の重要なオプションとして国際的・国内的に認識されているが、実用化に当たっては実施に要するコスト、特に全体の6割以上を占める分離・回収コストの低減が課題となっている。

「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」では、圧力を有するガス源であるIGCC等から、従来技術の3分の1程度の1,500円/t-CO₂以下でCO₂を分離・回収する技術の確立を目指す。合わせて、1,000円/t-CO₂以下でCO₂を分離・回収する技術を確認する（図2-1）。

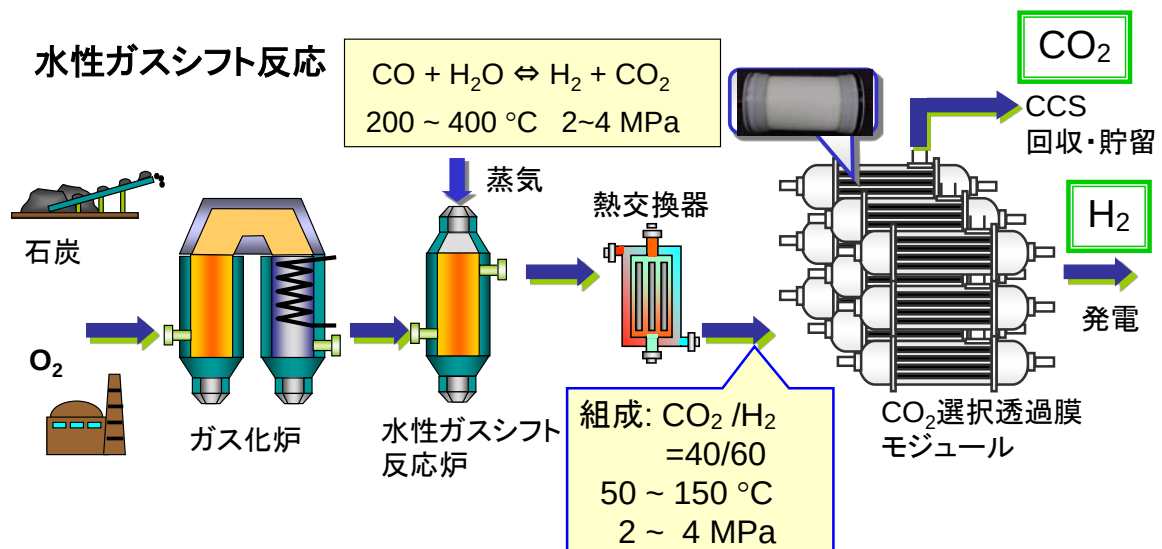


図2-1 CO₂回収型IGCCの概念図

「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」（平成23年度～平成26年度）においては、「分子ゲート機能CO₂分離膜の技術研究開発」（平成18年度～平成22年度）で開発した分子ゲート機能CO₂分離膜（図2-2）や試作モジュールを基礎として、膜素材のCO₂の透過性や選択性などの高性能化を図るとともに、膜の連続製造技術の開発や膜モジュール（図2-3）の耐圧・耐久化、大型化を図るなど実用化に向けた研究開発を行う。

CO₂分子ゲート機構： 膜中のCO₂分子がH₂の透過を阻止 CO₂は透過可能

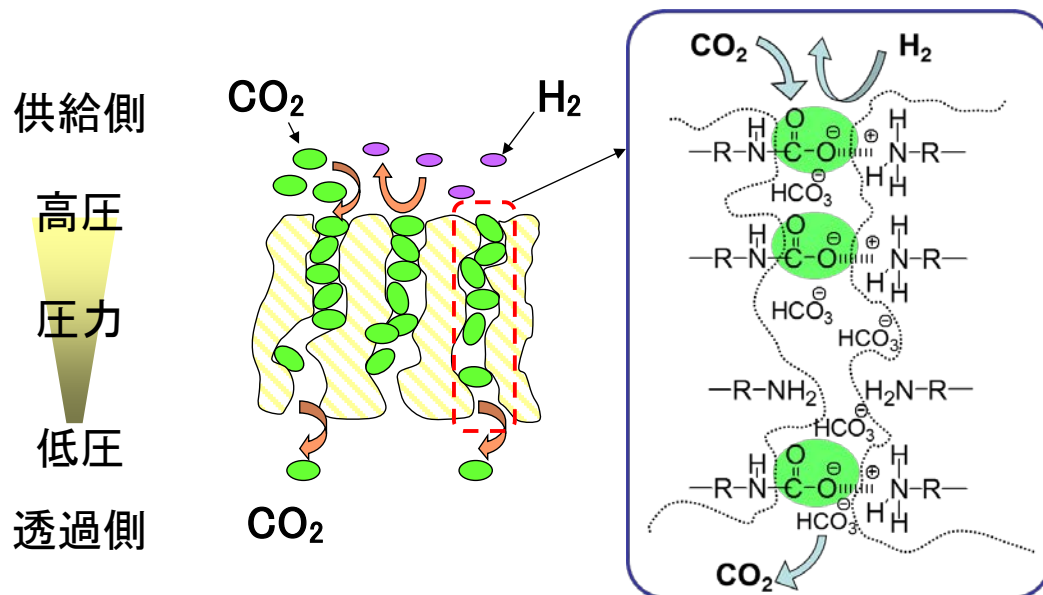


図2-2 CO₂分子ゲート機構によるCO₂分離

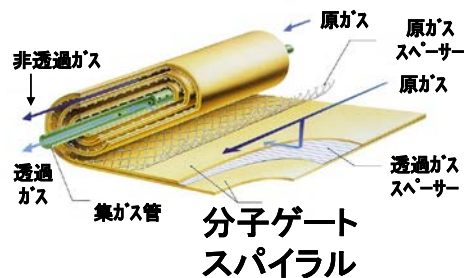


図2-3 膜モジュールの概念図

具体的には、膜素材のCO₂の透過性や選択性などの高性能化を図るとともに、膜の連続製造技術の開発や膜モジュールの耐圧・耐久化、大型化を図るなど実用化に向けて、分離膜技術の確立、実機膜モジュールの開発、膜システムの開発を実施するものである。

(1) 分離膜技術の確立

膜モジュール性能が発揮できるように分離膜の改良を行いつつ、分子ゲート

機能 CO₂ 分離膜の実用化に向けて実システムで要求される耐不純物性、耐乾躁性、耐圧性、耐久性等の「プロセス適合性」を確立する。合わせて、1,000 円/t-CO₂ 以下で CO₂ を分離・回収する技術を確認する。具体的には、(1) 分離性能の改良、(2) 耐不純物性、(3) 耐乾躁性、(4) 耐圧性、(5) 耐久性、(6) その他のプロセス適合性、(7) 1,000 円/t-CO₂ 以下を可能とする分離膜(CO₂/H₂ 選択性が 100)の開発を行う。

(2) 実機膜モジュールの開発

連続安定製膜のために必要な要素技術を確立して、実機膜モジュールに供する分離膜の安定製造を可能とする。具体的には、(1) 連続安定製膜のための検討、(2) 実機型膜モジュールの検討、(3) 膜モジュールの大型化の検討を行う。

(3) 膜分離システムの開発

膜分離システムの適用調査、プロセス検討データの取得により、開発した分離膜モジュールに最適なシステム検討を行う。具体的には、(1) 膜分離システムの検討、(2) 膜分離プラントの概念設計を行う。

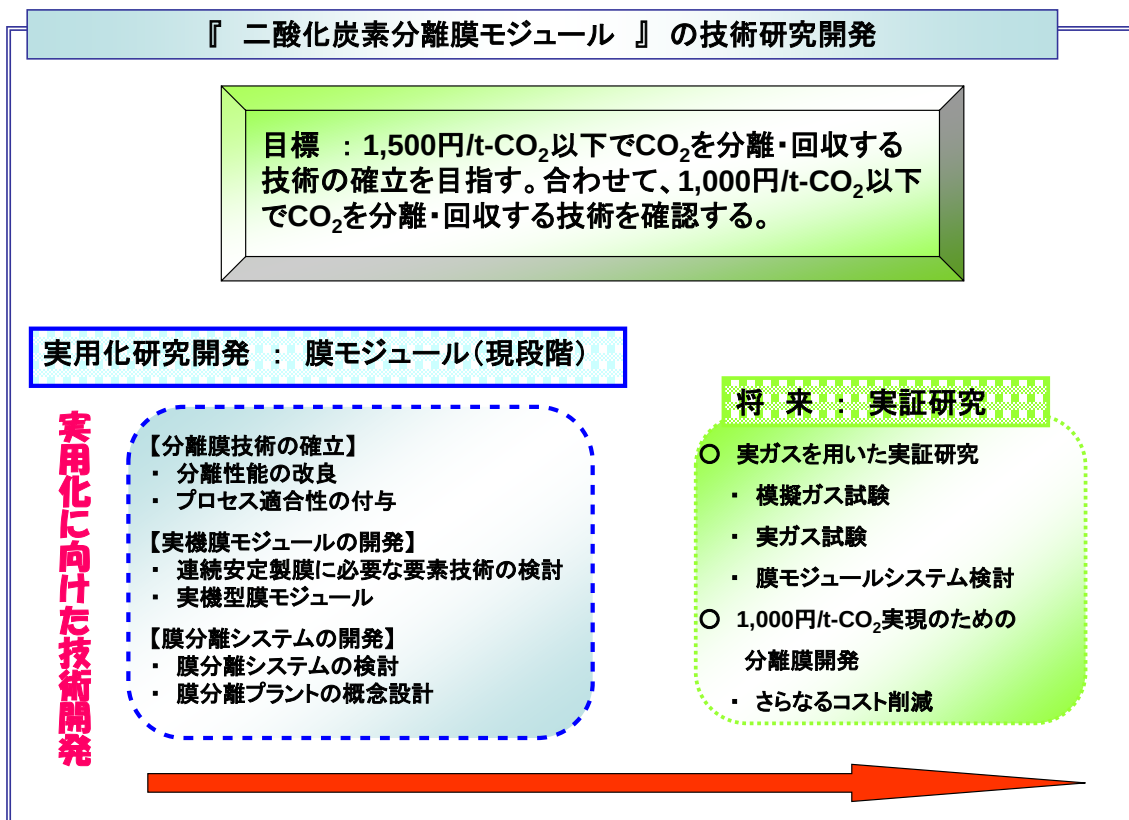


図2-4 二酸化炭素分離膜モジュールの技術研究開発

2-1-1 全体の目標設定

先に述べたプロジェクト全体の目標を表 2-1 にまとめて以下に示した。ここで、事後評価時点とは、平成 27 年 3 月末とする。

表 2-1 全体の目標

項目	目標・指標 (事後評価時点)	設定理由・根拠等
1. 分離膜技術の確立	分離・回収コスト 1,500 円/t-CO ₂ 以下を実現するための膜モジュール性能が発揮できるように分離膜の改良を行いつつ、分子ゲート機能 CO ₂ 分離膜の実用化に向けて実システムで要求される耐不純物性、耐乾躁性、耐圧性、耐久性等の「プロセス適合性」を確立する。合わせて、1,000 円/t-CO ₂ 以下で CO ₂ を分離・回収する技術を確認する。	「分子ゲート機能 CO ₂ 分離膜の技術研究開発」の成果を受けて、実システムに適用できる分離膜にするためには実システムで要求される耐不純物性、耐乾躁性、耐圧性、耐久性等のプロセス適合性を確立することが必要である。
2. 実機膜モジュールの開発	連続安定製膜に必要な要素技術を確認して、実機膜モジュール（直径 10cm、長さ 1m）に供する分離膜の安定製造を可能とする。	膜性能にバラツキがあると、膜モジュール性能が著しく低下するため、連続安定製膜のための要素技術の確立が必要である。
3. 膜分離システムの開発	分離・回収コスト 1,500 円/t-CO ₂ 以下を達成するために、膜分離システムの適用調査、プロセス検討データの取得により、開発した分離膜モジュールに最適なシステム設計を行う。	分離膜モジュールの性能を最大限に引き出すには、膜分離システムの最適化が不可欠である。

2-1-2 個別要素技術の目標設定

個別要素技術の最終目標および設定理由を表 2-2 に示した。

表 2-2 個別要素技術の目標

要素技術	目標・指標 (事後評価時点)	設定理由・根拠等
1. 分離膜技術の確立		
1) 分離性能の改良	CO ₂ 分離・回収コスト 1,500 円/t-CO ₂ を達成する CO ₂ /H ₂ 選択性、CO ₂ 透過速度を有する複合膜を作製する。	分離機能層の組成の最適配合、架橋方法等の検討とともに、製造ラインで使用が可能な方法の検討が必要。
2) 耐不純物性	IGCC 等における代表的な不純物組成に対する不純物耐性を付与する。	IGCC の場合は、イオウ成分、煤塵が分離膜性能に悪影響を与えることが懸念される。
3) 耐乾躁性	湿度 40%~80%RH の間で著しい機能の低下 (CO ₂ 透過性 50% 以下) の無い分離膜を開発する。	分子ゲート機能は加湿条件で発現するが、分離膜で CO ₂ を回収する過程で H ₂ O 濃度が下がることから、低湿度で安定した性能を得る分離膜の開発が重要である。
4) 耐圧性	IGCC の高圧化 (4MPa) に対応した耐圧性を有する分離膜を開発する。	ガス源の元圧をそのまま使用することが必要膜面積の低減となり、これは膜設備の小型化、CO ₂ 分離コストの低減にも繋がる。
5) 耐久性	1,000 時間以上の連続運転で著しい機能の低下の無い分離膜を開発する。	分離膜の耐用年限は、CO ₂ 分離コストに影響することから、耐用年数が長い分離膜の開発が必要となる。
6) その他のプロセス適合性	耐熱性の向上 (100℃以上) を目指す。	高温での使用が分離膜の性能を生かすために有効である。
7) 1,000 円/t-CO ₂ 以下を可能とする分離膜 (CO ₂ /H ₂ 選択性が 100) の開発	分離膜の CO ₂ /H ₂ 選択性が 100 以上である分離膜の膜素材、支持膜材料を開発する。	CO ₂ /H ₂ 選択性が 100 の分離膜を開発することで、CO ₂ 分離・回収コストが 1,000 円/t-CO ₂ 以下となる。
2. 実機膜モジュールの開発		
1) 連続安定製膜	分離膜を連続安定製造するために必要となる要素技術の抽出とその要素技術を検討する。	ラボレベルで開発した膜素材、製膜技術を用いて、実機膜モジュールに供する分離膜を連続に安定的に製造することが必要である。

2) 実機型膜モジュール	実機型膜モジュール（直径 10cm、長さ 20cm 程度）を製作して、実システムあるいは近似した状態での試験を行い、実機型膜モジュールの技術を確認する。	実機型膜モジュールの技術確立のために、実機型膜モジュールの製作が必要である。
3) 膜モジュールの大型化	膜長が 1m、直径が 10cm の膜モジュールを製造する。	分離膜のコスト削減は、単位体積当りの膜面積を大きくすることで達成されるので、そのために、膜モジュールの大型化が重要となる。
3. 膜分離システムの開発		
1) 膜分離システムの検討	実システムを調査し、開発した分離膜でのプロセス検討等から分離膜システムの最適化を行う。	分離膜モジュールの性能を最大限に引き出すには、分離膜システムの最適化が不可欠である。
2) 膜分離プラントの概念設計	膜分離プラントの概念設計を行い、CO ₂ 分離・回収コスト、エネルギーの両面から、膜分離システムの有効性を確認する。	実用化のためには膜分離システムの有効性確認が必要である。

注：「1.7) 1,000 円/t-CO₂ 以下を可能とする分離膜（CO₂/H₂ 選択性が 100）の開発」については、中間評価（平成 24 年 11 月 13 日）において、システム検討の結果から目標分離性能が再設定されたため、表 2-3 の通り改訂する。

表 2-3 個別要素技術の目標（改訂）

要素技術	目標・指標 (事後評価時点)	設定理由・根拠等
1. 分離膜技術の確立		
7) 1,000 円/t-CO ₂ 以下を可能とする分離膜の開発	1,000 円/t-CO ₂ 以下で CO ₂ を分離・回収する技術を確認する。	さらなる分離性能向上により、コストを低減する。

3. 成果、目標の達成度

3-1 成果

3-1-1 全体成果

「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」（平成 23 年度～平成 26 年度）

では、分離膜技術の確立、実機膜モジュールの開発、膜分離システムの開発を行い、以下の成果を得た。

① 分離膜技術の確立

システム検討を基に、分離・回収コスト 1,500 円/t-CO₂ 以下を達成するための要求膜性能を見出した。デンドリマー化学構造、化学固定、マトリクス改良並びに架橋密度の検討等による分離膜の改良によって分離性能を向上させ、一段処理プロセスにおける目標分離性能 (CO₂/H₂ 選択性が 125 であり、CO₂ 透過速度が $3.0 \times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$) を達成した。合わせて、耐不純物性、耐乾燥性、耐圧性、耐久性等のプロセス適合性に関する調査、検討を行い、プロセス適合性を確立した。また、1,000 円/t-CO₂ 以下で CO₂ を分離・回収する技術を確認した。

② 実機膜モジュールの開発

連続安定製膜に必要な要素技術課題を抽出するために、実機型膜モジュール (直径 10cm、長さ 20cm 程度) を試作した。また、モジュール性能試験を行い、分離性能を確認すると共に、分離膜性能のバラツキなどの要素技術課題を抽出し、添加剤添加系における広膜面積化試作により要素技術の確認を行った。大型膜モジュール (直径 10cm、膜全長 1m) を製作した。

③ 膜分離システムの開発

膜分離・回収コスト 1,500 円/t-CO₂ 以下を達成するための膜システム検討を行い、一段システムの提案を行った。さらに、膜性能と CO₂ 分離・回収コストとの関係を推算し、要求膜性能を明らかにした。また、ラボデータから膜透過ガス流れシミュレーション解析を行い、膜モジュール内の混合ガス流れを明らかにするとともに、当該膜特性に適した膜分離システムを検討し、効果的な膜分離システムを提案できた。更に、膜分離プラントの概念設計を行い、CO₂ 分離・回収コスト、エネルギーの両面から、膜分離システムの有効性を確認した。

3-1-2 個別要素技術成果

1) 分離膜技術の確立

PVA 系分子ゲート機能 CO₂ 分離膜を基に、実機モジュールで 1,500 円/t-CO₂ 以下のコストで IGCC 排ガスから CO₂ を分離するための単膜分離性能を得ることを目標として分離膜技術の開発を行った。

1. 1) 分離性能の改良について

効率的な CO₂/H₂ 分離が可能な分離膜の候補として、「分子ゲート機能 CO₂ 分離膜」がある。図 2-2(p.9 参照)に、分子ゲート機能 CO₂ 分離膜の概念を示した。分子ゲート機能 CO₂ 分離膜では、CO₂ がガスの通路を占有して、H₂ の透過を阻止するという機能を有している。膜分離の特性として、CO₂ 自体は圧力差で膜を透過することが可能であるが H₂ は透過を阻止されるため、膜の透過側で高濃度の CO₂ を得ることが可能となる。分子ゲート機能の発現が期待される材料として、ポリアミドアミン (PAMAM) デンドリマーに着目し、ポリエチレングリコール (PEG) 系とポリビニルアルコール (PVA) 系のデンドリマー内包型分離膜を研究しており、CO₂ 透過速度と CO₂/H₂ 選択性が共に世界トップレベルである。

本プロジェクトでは、分離性能を向上させるために、以下に記す通り分離膜の改良を行った。

PEG 系分子ゲート膜

PEG 系分子ゲート膜の開発では、本プロジェクト開始時において、「相溶性」(相分離を解消)があり、かつ「多官能」(耐圧性向上)の新規架橋剤 4GMAP を開発しており、相溶性の向上と架橋密度の向上を同時に満たすことが出来、加圧条件下での分離性能の改善が確認された。

分離膜の分離性能は、パーミアンス (以下、 Q と表記) と分離係数 (以下、 α と表記) で表される。膜透過が拡散律速の場合において、CO₂ のパーミアンス、 Q_{CO_2} は、

$$Q_{CO_2} = \frac{SD}{L}(p_{CO_2, feed} - p_{CO_2, perm})$$

(ここで、 Q_{CO_2} : CO₂ のパーミアンス、 S : CO₂ の溶解度係数、 D : CO₂ の拡散係数、 L : 膜厚、 $p_{CO_2, feed}$: 供給側における CO₂ 分圧、 $p_{CO_2, perm}$: 透過側における CO₂ 分圧)

と表され、CO₂ の膜透過が拡散律速の場合には、 Q_{CO_2} は膜厚に反比例すること

になる。従って、薄膜化を行うことにより、膜性能評価において Q_{CO_2} と膜厚が反比例するか否かを調べたが、膜厚が減少すると Q_{CO_2} は増加したが、膜厚には反比例しない ($Q_{CO_2} \propto \text{膜厚}^{-0.62}$) ことが確認された。また、分離係数についても薄膜化に伴い 12 程度に低下した。これは、 H_2 のパーミアンス (Q_{H_2}) が膜厚に反比例するため (拡散律速)、薄膜化に伴い、 Q_{H_2} の増加が Q_{CO_2} の増加よりも大きくなるためと考えられる。このことから、薄膜化によって分離性能を向上させるためには、 CO_2 の透過を拡散律速にすることが必要と考えられた。

以上の先行プロジェクトでの検討結果を受け、平成 23 年度は、 CO_2 の透過を拡散律速にするための種々の方策を検討した。その結果、分離性能を向上させるための膜素材として CO_2 の反応を促進させる化合物 A の添加が有効であることを見出した。

なお、本プロジェクトでの分離性能評価では、実験の安全上の観点から H_2 ではなくヘリウム (He) を使用している。 H_2 と He の分子サイズには大きな違いがなく ($H_2: 2.9 \text{ \AA}$ 、 $He: 2.6 \text{ \AA}$)、ガス透過性にも大きな違いがないため ($Q_{He} \approx 0.8 Q_{H_2}$)、 He は H_2 の代替ガスとして妥当である。

化合物 A を添加した PEG 系分子ゲート膜における、膜厚と分離性能との関係を図 3-1 に示す。

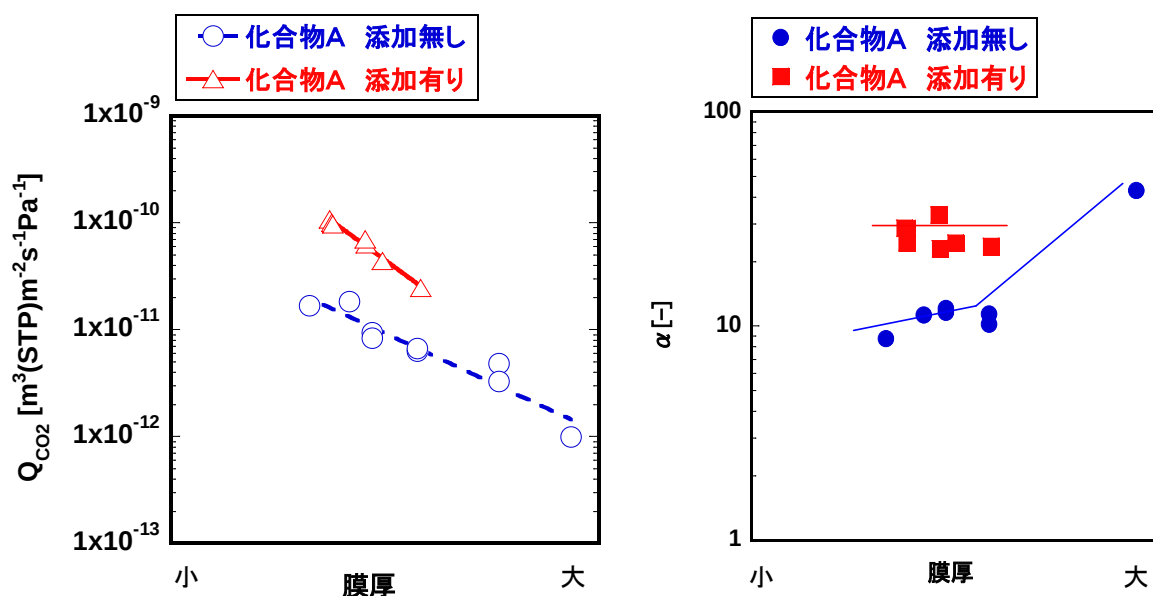


図 3-1 PEG 系分子ゲート膜の分離性能の膜厚依存性

化合物 A 添加膜の Q_{CO_2} は膜厚に反比例した。従って、化合物 A を添加した分子ゲート膜においては、 CO_2 の膜透過が拡散律速になっていることが明らかとなった。また、化合物 A 添加膜では、薄膜化によって高い分離係数 (30 前後) を維

持したまま Q_{CO_2} を増加出来ることが確認された。このように、化合物 A を添加することで、薄膜化によって分離係数を低下させずに CO_2 透過速度を増加できることを見出した。

以上の検討から、PEG 系分子ゲート膜において、化合物 A の添加などの膜材料の改良と薄膜化によって、最終的に、分離性能は、 Q_{CO_2} について最大 1.0×10^{-10} ($\alpha_{CO_2/He} = 40$)、 $\alpha_{CO_2/He}$ について最大 48 ($Q_{CO_2} = 4.7 \times 10^{-11}$) まで向上させることができた。

分子ゲート膜の分離メカニズムを図 3-2 に示す。

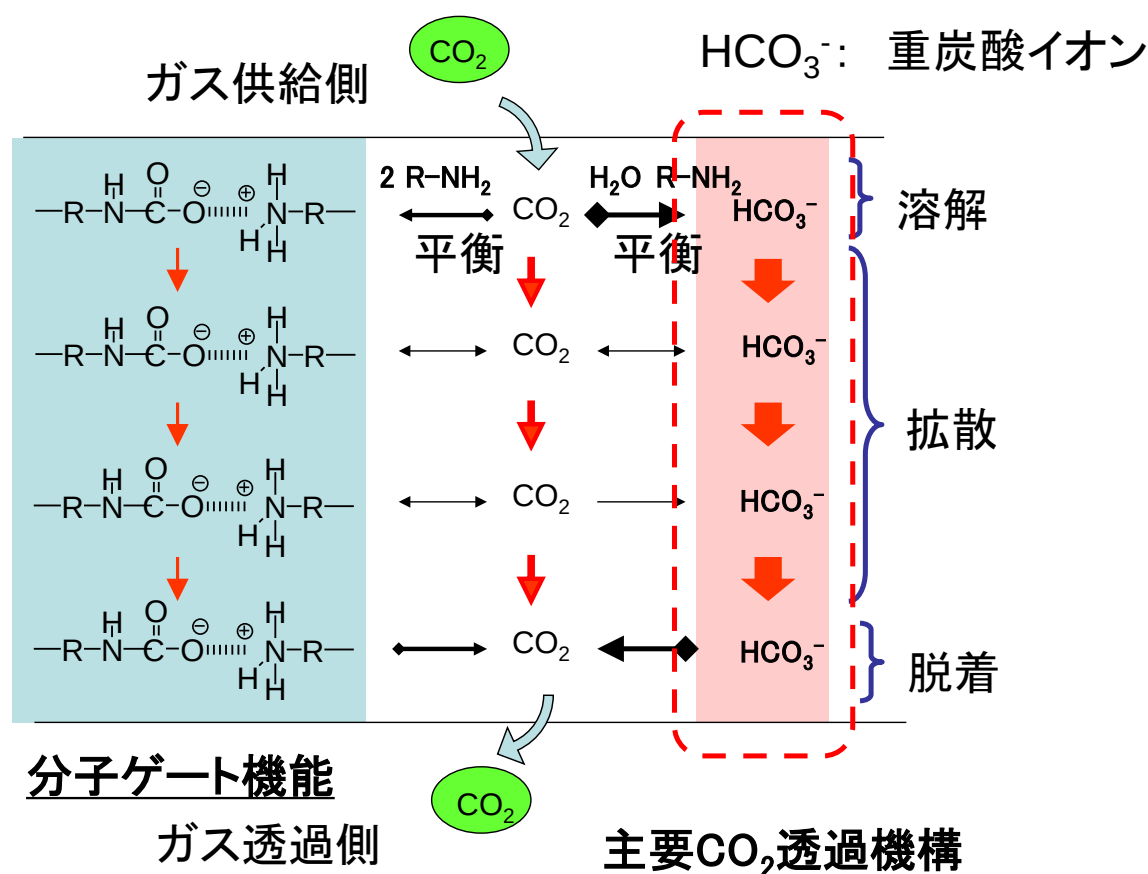


図 3-2 分子ゲート膜の分離メカニズム

CO_2 は分子ゲート膜中に CO_2 、カルバメート、重炭酸イオンの形で入ると考えられるが、その多くはカルバメートあるいは重炭酸イオンになると考えられる。このうち、カルバメートは移動速度が小さいため、重炭酸イオンとして膜中を拡散して透過する経路が主な CO_2 透過機構であると考えられる。上記の検討から、 CO_2 透過の律速過程は透過側界面における重炭酸イオンから CO_2 になる反応であることが示唆されたため、反応速度を上げるための検討を進めることで、分離性能をさらに向上できると考えられた。

PVA 系分子ゲート膜の検討

これまで、PEG 系材料を中心に研究開発を行い、分子ゲート機能などの基盤技術を確立できた。しかしながら、膜モジュールの大型化などの実用化のためには、PEG 系分子ゲート膜と並行して開発を進めてきた PVA 系分子ゲート膜の方が薄膜化が容易で実用化に適していることが分かり、これを中心に開発することにした。

PVA 系分子ゲート膜の膜素材と膜構造の一例を図 3-3 に示す。

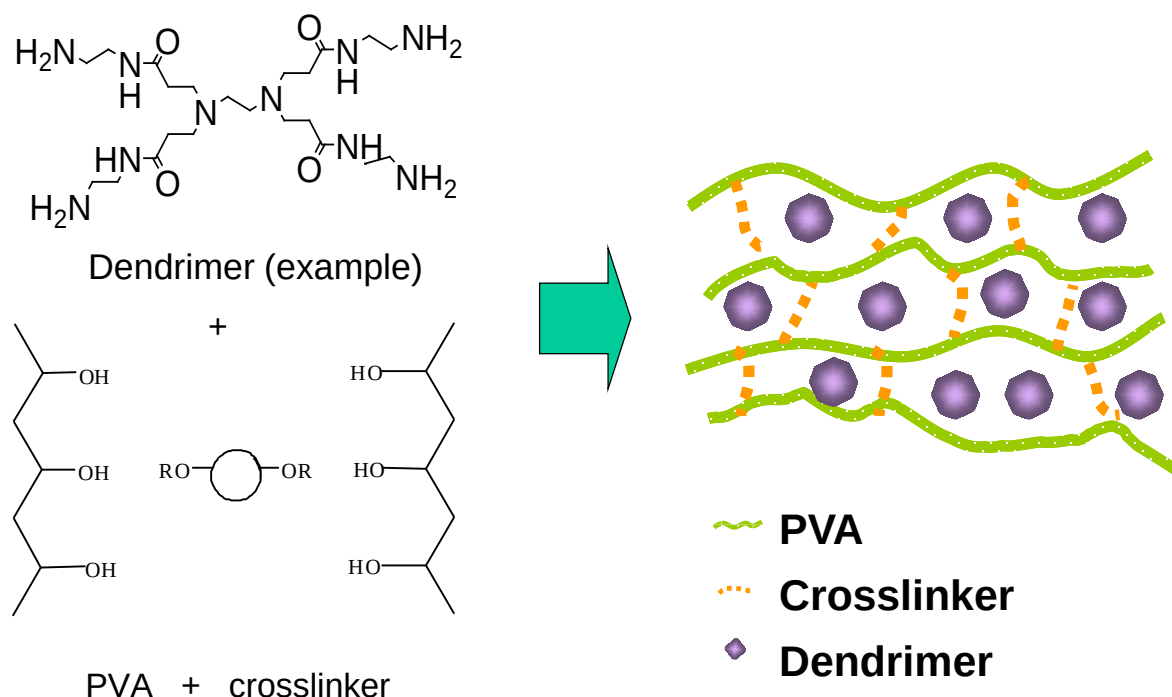


図 3-3 PVA 系分子ゲート膜の膜素材と膜構造

まず、Ti 系架橋剤を使用することによって PVA を架橋し、架橋 PVA ネットワーク中にデンドリマーを物理的に担持した。ただし、物理的に担持されたデンドリマーがブリードアウトする現象が観察された。

そこで、デンドリマーの保持安定性を向上させる目的で、デンドリマーを化学的に固定化できる膜材料を見出し、その配合条件で製膜手法を開発した。その結果、デンドリマーのブリードアウト量が大きく抑制できるようになった。

この改良された PVA 系分子ゲート膜に、PEG 系分子ゲート膜で得られた知見を組み合わせた PVA 系分子ゲート複合膜を開発した。同時に、PEG 系分子ゲート膜の開発で述べたように、薄膜化の検討も進めた。特に、薄膜化の検討の過程で

種々の塗工技術を検討した。方法としてはマイクログラビア法、スロットダイ法、ディップコーティング法、アプリケーター法などが知られている。そこで、将来の連続製膜につながる方法としてディップコーティング法及びアプリケーター法による薄膜化の検討を進め、最終的にアプリケーター法を採用した。また、並行して、分離メカニズムによる知見から得られた研究開発方針に従い、He のパーミアンスを抑制し分離係数を上げるための膜組成についての検討を進めた。

その結果、従来よりも He の透過量を大幅に低減することに成功し、分離係数が大幅に増加した。

「3. 1) 膜分離システムの検討」において後述するように、当初、高純度及び高回収率を達成させるために多く使われている 2 段プロセスで検討を開始した。しかし、中間昇圧エネルギーの必要性やシステムの必要性、又、当該膜の特性から 1 段膜システムの優位性を提案し、外部からの投入エネルギーをミニマムにするべく、目標とする基本的な条件における膜モジュール性能を推算提案し、膜開発の指標とした。その結果、「 $Q_{CO_2}=3 \times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ 、 $\alpha=125$ 」によって、開発目標 1,500 円/t- CO_2 の達成が可能であることを見出した(図 3-4)。さらに、開発目標 1,000 円/t- CO_2 のための要求膜性能についての指標も見出すことが出来た。

透過速度と CO_2 回収コスト

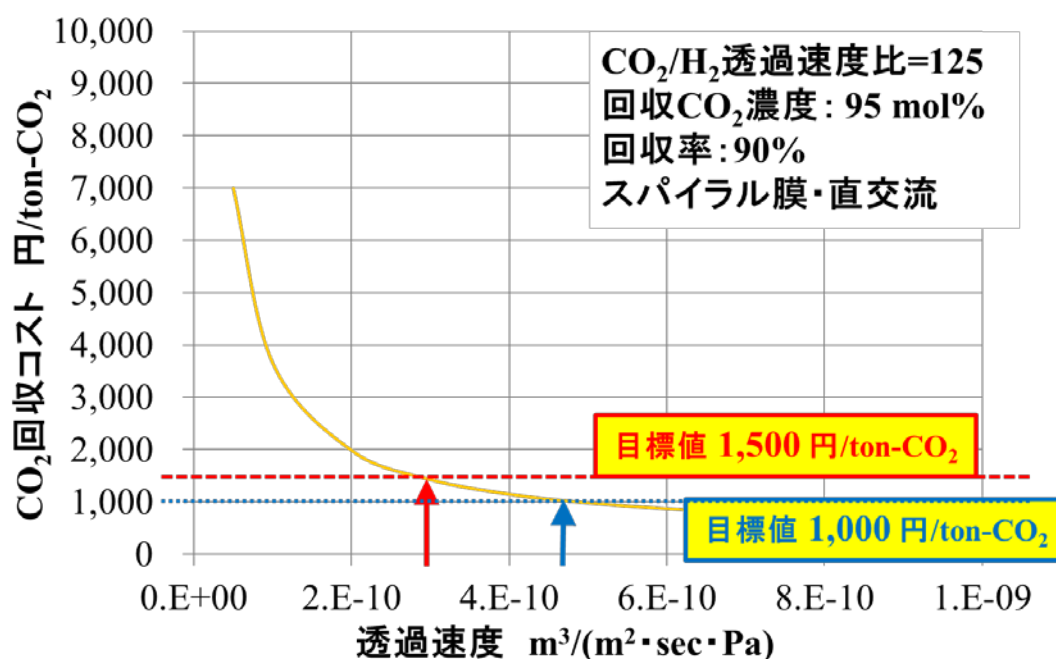
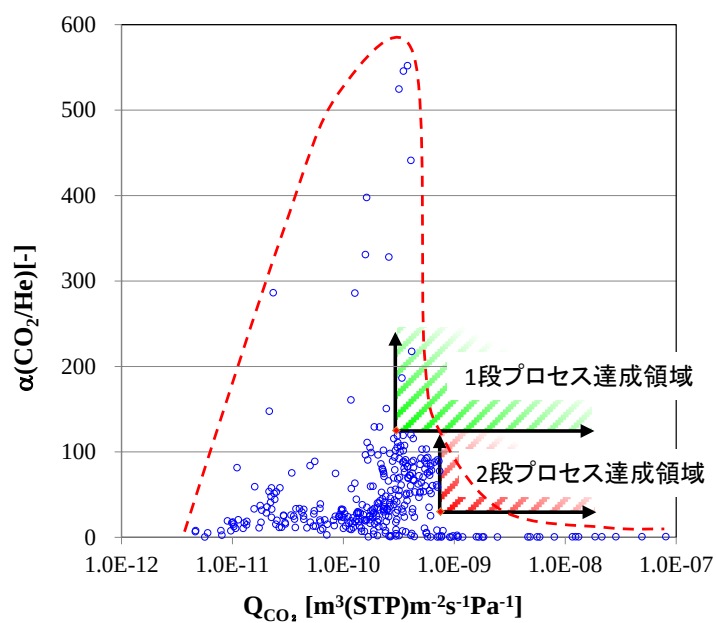
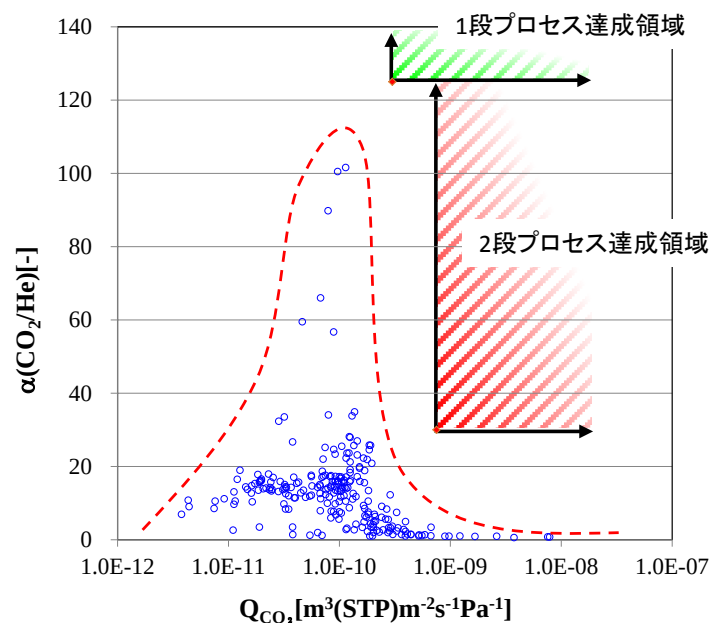


図 3-4 透過速度と CO_2 回収コスト

中間評価時点での PVA 系分子ゲート膜の大気圧及び加圧下における分離性能を図 3-5 に示す。なお、1 段プロセスと 2 段プロセスの 2 つのケースで分離・回収コスト 1,500 円/t-CO₂ 以下を達成出来る要求膜性能を図中に合わせて示す。



(a) 大気圧での評価結果



(b) 加圧条件 (0.7MPa) での評価結果
(供給ガス組成：CO₂/He=80/20)

図 3-5 PVA 系分子ゲート膜の大気圧及び加圧条件 (0.7MPa) における分離性能

図 3-5 に示す通り、大気圧条件において 1 段プロセス、2 段プロセスの目標分離性能を共に達成した。加圧条件においても、2 段プロセスの分離係数については達成することが出来た。このように、膜材料の改良によって加圧条件においても高い分離係数 ($\alpha > 100$) を示す複合膜が得られ、1 段プロセスの目標値達成の方向性の目処をつけることが出来た。

上記の結果を受け、中間評価以降、①CO₂ パーミアンスを向上させるための膜材料、操作条件の検討、②He のパーミアンスを抑制し分離係数を上げるための膜組成の詳細検討を実施し、分離膜の改良および運転条件の最適化をさらに進めた結果、図 3-6 に示す通り、開発目標 1,500 円/t-CO₂ を実現するために必要とされた世界トップレベルの目標分離性能を達成することができた。

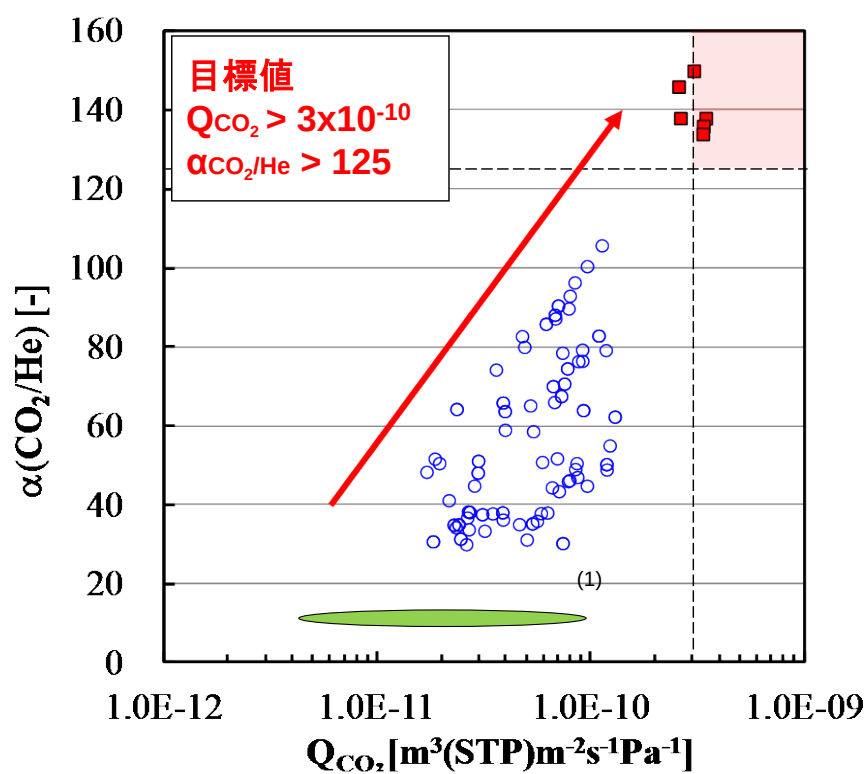


図 3-6 PVA 系分子ゲート膜の分離性能

((1) : H. Lin, B. Freeman *et al.*, *Science*, **311**, 639-642 (2006))

単膜、膜モジュールの分離性能の CO₂ 分圧依存性（高圧試験）

2.4MPa までの高圧試験を行い、単膜および膜モジュールの分離性能の CO₂ 分圧依存性を測定した。試験結果を図 3-7 に示す。

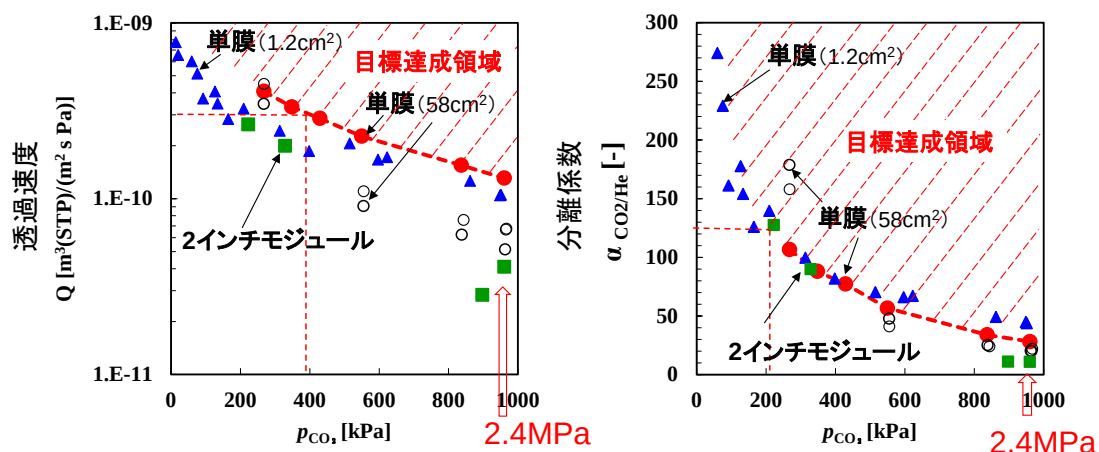


図 3-7 単膜、膜モジュールの分離性能の CO₂ 分圧依存性

単膜、膜モジュールによらず、分離性能は同様の CO₂ 分圧依存性を示した。また、分離性能はプロセス検討から算出した目標達成領域に入っており、2.4MPa の高圧試験においても、ラボレベルでの目標性能の達成が確認された。

以上を総括すると、PEG 系分子ゲート膜における化合物 A の添加などの膜材料の改良と薄膜化による分離性能向上の知見をもとに、①CO₂ パーミアンスを向上させるための膜材料、操作条件の検討、②He のパーミアンスを抑制し分離係数を上げるための膜組成の検討を実施し、分離膜の改良および運転条件の最適化を進めた結果、開発目標 1,500 円/t-CO₂ を実現するために必要とされた世界トップレベルの目標分離性能を達成することができた。

1. 2) 耐不純物性について

IGCC の代表的な不純物として硫化水素 (H_2S) の曝露試験を行った。分離膜として、①通常の膜サンプルと、②保護層としてシリコンコーティングを施した膜サンプルの 2 種類を用いた。 H_2S 曝露条件は、 H_2S 濃度 30ppm、 85°C 、1 週間である。

通常の膜サンプルを用いた曝露試験前後の分離性能の変化を図 3-8 に示す。

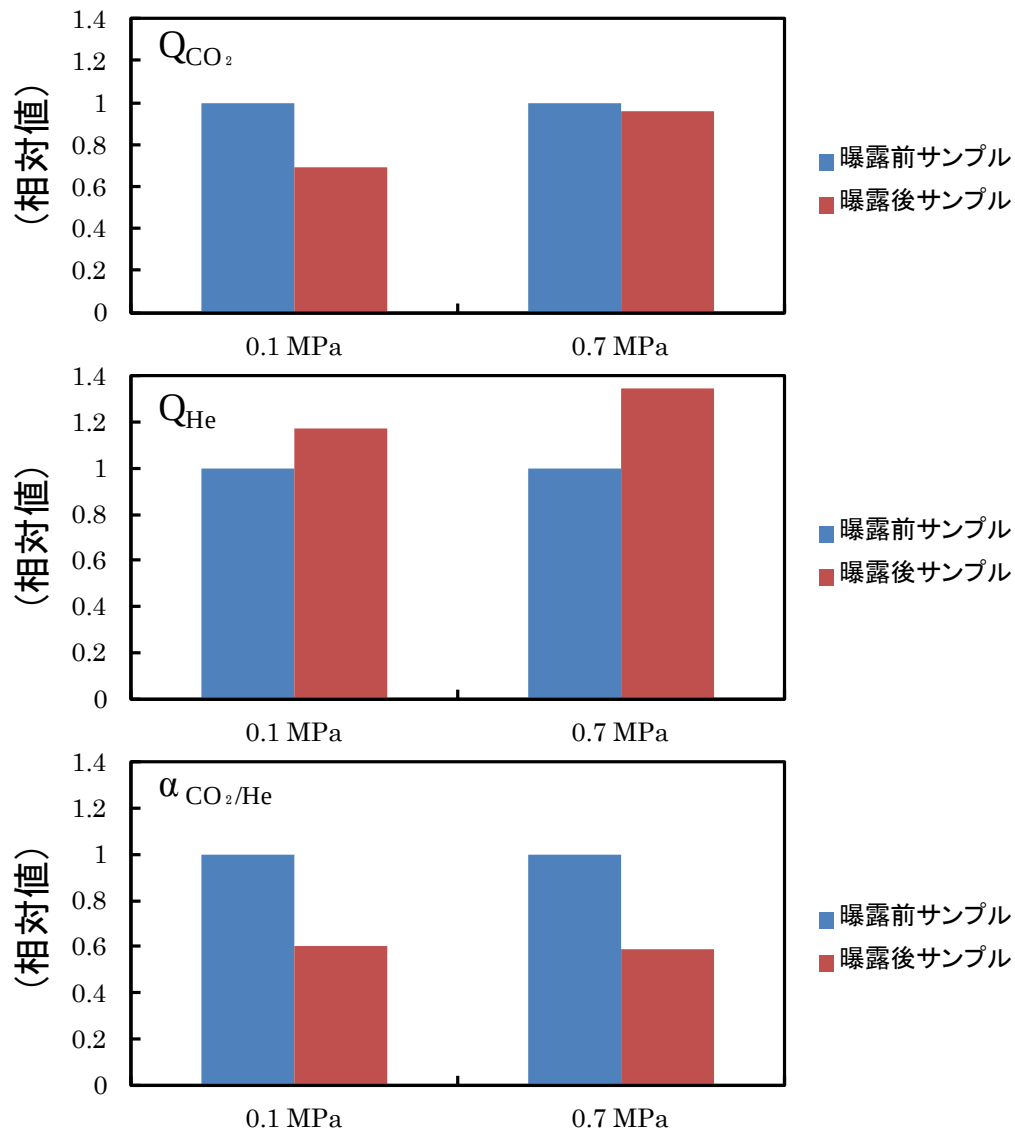


図 3-8 H_2S 曝露による分離性能の変化
(シリコンコーティング無し)

その結果、 H_2S 曝露前後で α が低下し、 H_2S 曝露の影響がみられた。
シリコンコーティングを施した分離膜を用いた曝露試験前後の分離性能の変化を図 3-9 に示す。

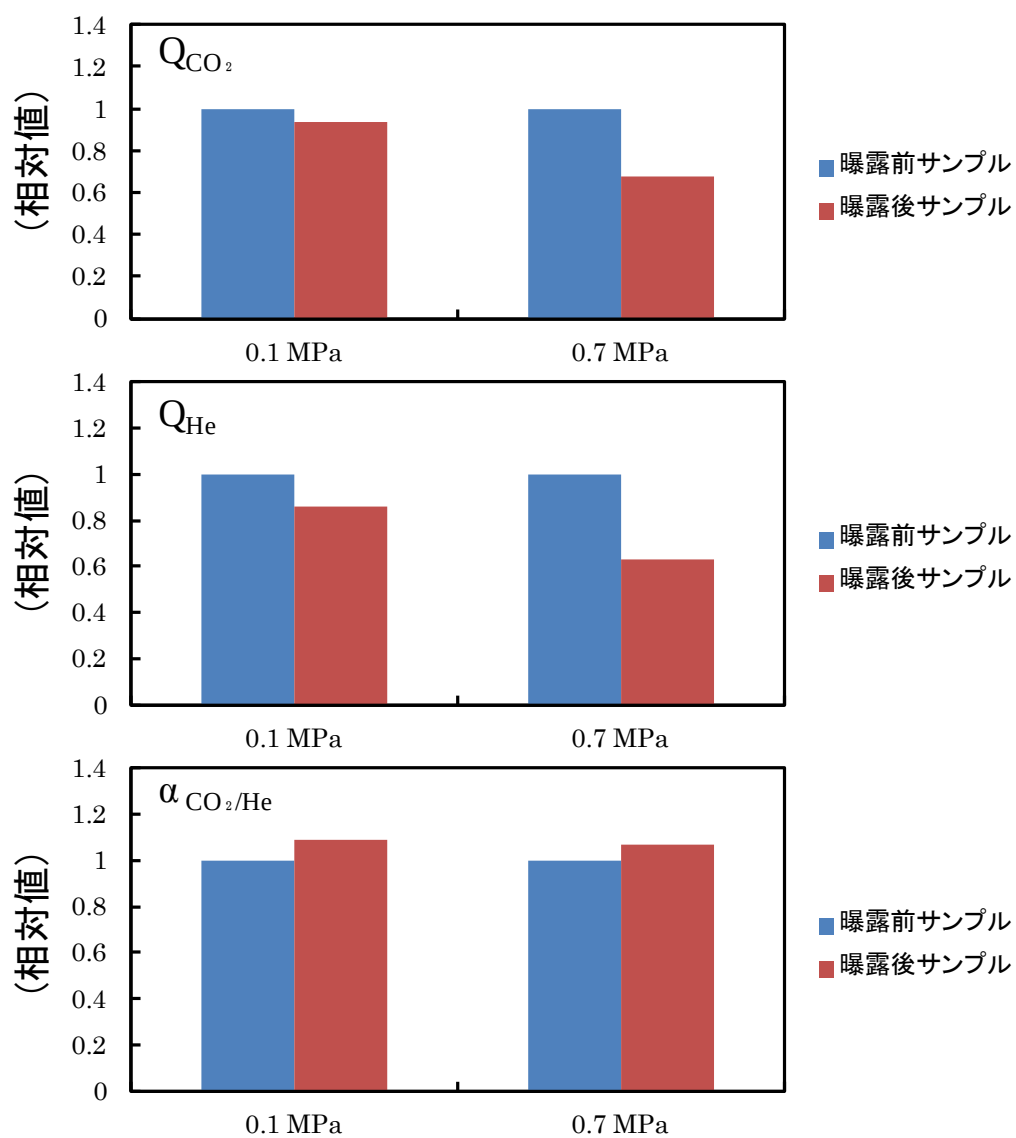


図 3-9 H_2S 曝露による分離性能の変化
(シリコンコーティングを施した膜サンプル)

シリコンコーティングを施した分離膜では α の大幅な低下は見られず、シリ

コンコーディングによって耐不純物性 (H_2S) が付与できることが明らかとなった。

1. 3) 耐乾燥性について

分子ゲート膜は加湿条件で高い分離性能を発現するが、分離膜で CO_2 を回収する過程で H_2O 濃度が下がることから、広い湿度範囲 (40~80%) で CO_2 分離性能が低下しないことが望まれる。また、水蒸気の導入は全体のコストにも影響を及ぼすため、より低湿度で高い膜性能を発揮する膜を開発することは重要である。分離メカニズムの観点から、吸水性の高い膜材料を用いることで低湿度でも膜内部の水分量が適した範囲となり膜性能が発揮されることが示唆された。そこで、PVA の種類が吸水性に与える影響について検討を行った。

高分子マトリクスとして用いているポリビニルアルコール (PVA) は膜組成の割合が大きいことから分子ゲート膜の吸水特性に大きく影響する。そこで、PVA の種類の違い (PVA-A、PVA-B、PVA-C) が膜の吸水特性に及ぼす影響について検討した。分子ゲート膜 (自立膜) の H_2O 収着等温線を図 3-10 に示す。

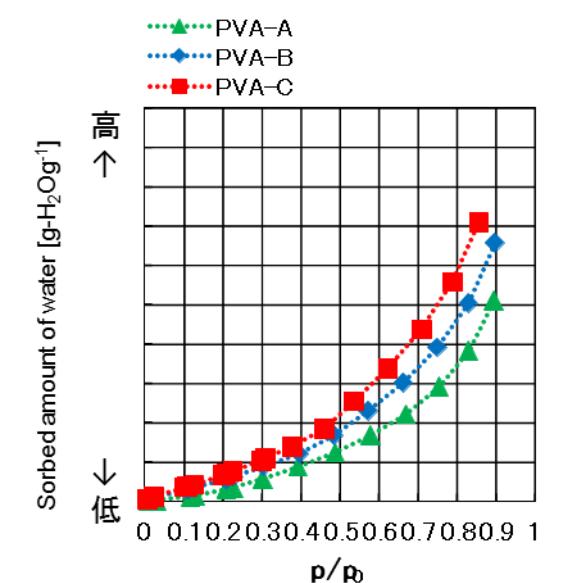


図 3-10 分子ゲート膜 (自立膜) の H_2O 収着等温線

PVA の種類を変えることで、分子ゲート膜の H_2O 収着量は向上した (PVA-A < PVA-B < PVA-C)。

PVA-C を使用した分子ゲート膜は、吸水性が向上するため、より低湿度においても高い分離性能を発揮することが期待される。そこで、PVA-B、PVA-C を用いて分子ゲート膜を作製し、その湿度依存性を測定した。

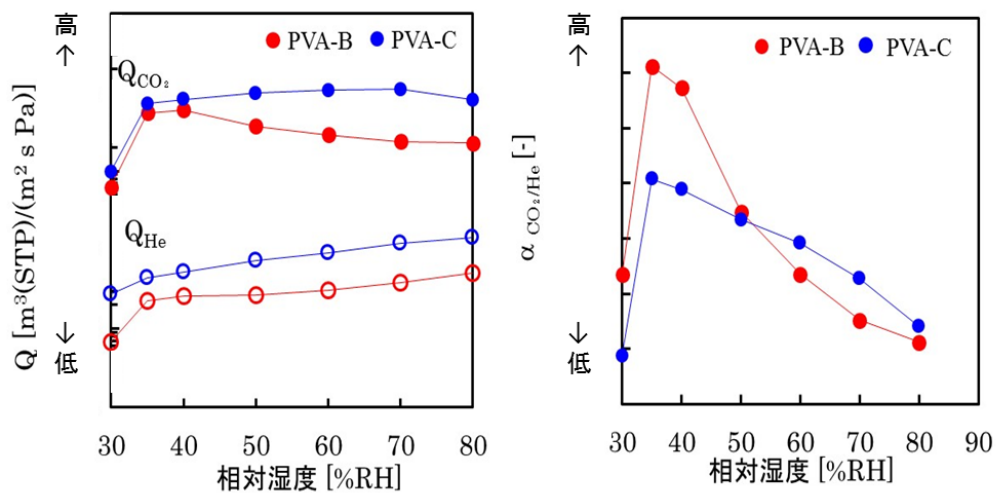


図 3-11 分離性能の湿度依存性

PVA-B, PVA-C 膜は低湿度でも高い透過性能を示した（図 3-11）。従って、膜材料の改良によって、膜の耐乾燥性を向上させることができ、耐乾燥性に関する目標を達成することができた。

1. 4) 耐圧性について

分離膜の耐圧性を検証するため、Heのドライガスを用いた耐圧試験を実施した。4.0MPa の圧力で、He ガスをセル内に充填した。耐圧試験を最大10 分間行った際、圧力計の変動により膜の破損の有無を確認した。実験結果を表 3-1 に示す。

表 3-1 ドライガスによる耐压試験結果

サンプル (Lot No.)	充填圧力 (MPa)	試験時間 (min.)	試験後の圧力値 (MPa)	充填ガス	耐压性
#1	4.0	10	4.0	He	○
#2	4.0	10	4.0	He	○
#3	4.0	10	4.0	He	○

その結果、4MPaまでの耐压性があることを確認した。

1. 5) 耐久性について

膜の耐久性を確認するために、0.7MPa において連続試験を実施した。試験結果を図 3-12 に示す。

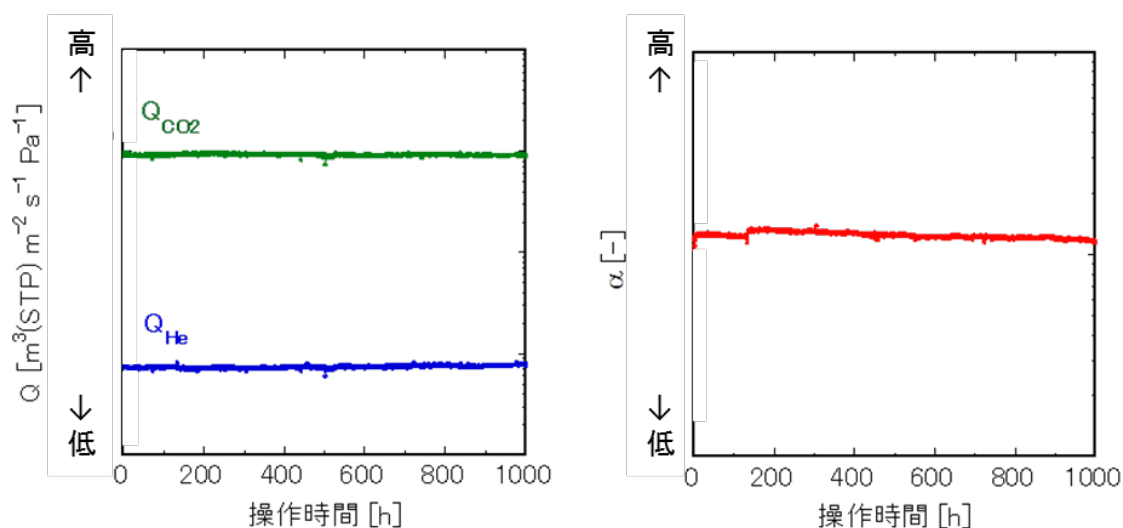


図 3-12 長期分離性能試験

1,000 時間の間、分離性能はほぼ一定であることを確認した（その後、3,000 時間までの耐久性を確認し、測定を終了した）。従って、作製した膜が 1,000 時間以上の耐久性を有することを確認した。

1. 6) その他のプロセス適合性について(耐熱性について)

耐熱性を検討するため、想定される 100℃以上の試験条件で分離性能評価を行った。その結果、経時的に安定な分離性能を示し、耐熱性を確認することができた（図 3-13）。

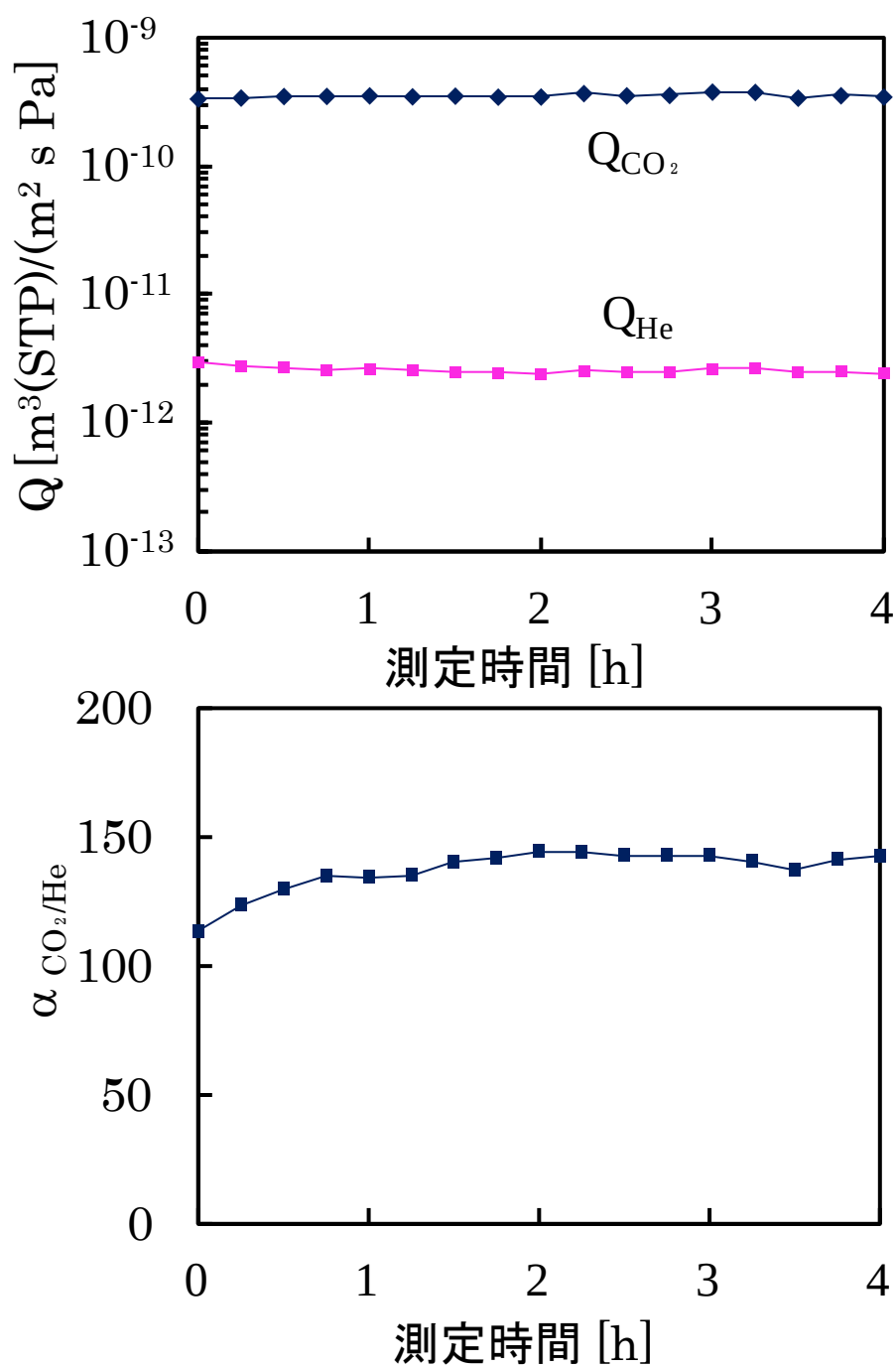


図 3-13 100°C以上での分離実験結果

1. 7) 1,000 円/t- CO_2 以下を可能とする分離膜の開発

図 3-4 に示したように、後述するシステム検討の結果から、開発目標 1,000 円/t- CO_2 以下を実現するための目標分離性能を見出した。

この目標分離性能を実現するためには、さらなる Q_{CO_2} の向上が必要である。これまでの分離メカニズムの検討結果から、分離性能向上のためには、①重炭酸イオン (HCO_3^-) 生成及び逆反応速度の増加 (反応促進剤等)、② HCO_3^- 平衡吸収量の増加、③炭酸水素イオンの拡散係数の増加、④薄膜化等の検討により 1,000 円/t- CO_2 以下を実現するための分離膜開発が必要であることが示された。

2) 実機膜モジュールの開発

2. 1) 連続安定製膜

京都研究室、倉敷研究室において PVA 系を中心に分離機能層の組成の最適配合の検討と分子ゲート複合膜の検討を行っており、当研究室は上記 2 研究室が考案した配合にてモジュール試作用に複合膜の大判化を行っている。京都・倉敷研究室にて開発された膜をベースに、小面積での膜性能を大判サンプルにて再現するための製膜条件検討を行った。

製膜手法を図 3-14 に示す。キャスト法により支持膜上へ分離機能層を形成した後、化合物 B を塗布するが、その塗布量の調整により膜性能再現の検討を実施した。

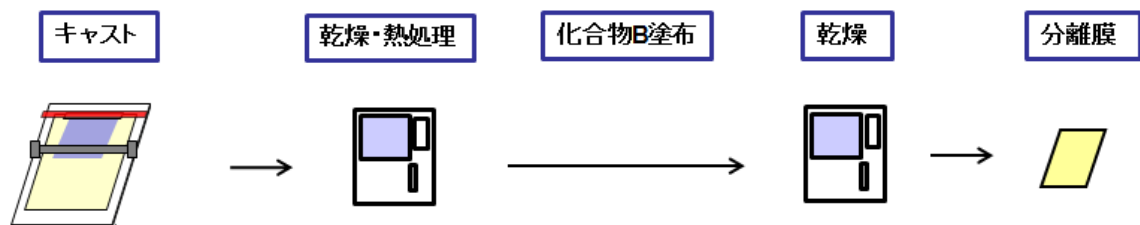


図 3-14 製膜手法

膜性能の化合物 B 塗布量依存性を評価した結果、選択性が極大値を取る塗布量を適正量が存在することを確認した。その適正量で大判サンプルを作製し、H25 年度に作製した茨木研究室の大判サンプルの膜性能データおよび京都・倉敷研究室の膜性能データと比較した結果を図 3-15 に示す。茨木研究室にて作製した大判サンプルに関しては、試作を重ねることでバラツキが改善し、京都・倉敷研究室の小面積サンプルとほぼ同等の性能を発現することを確認した。

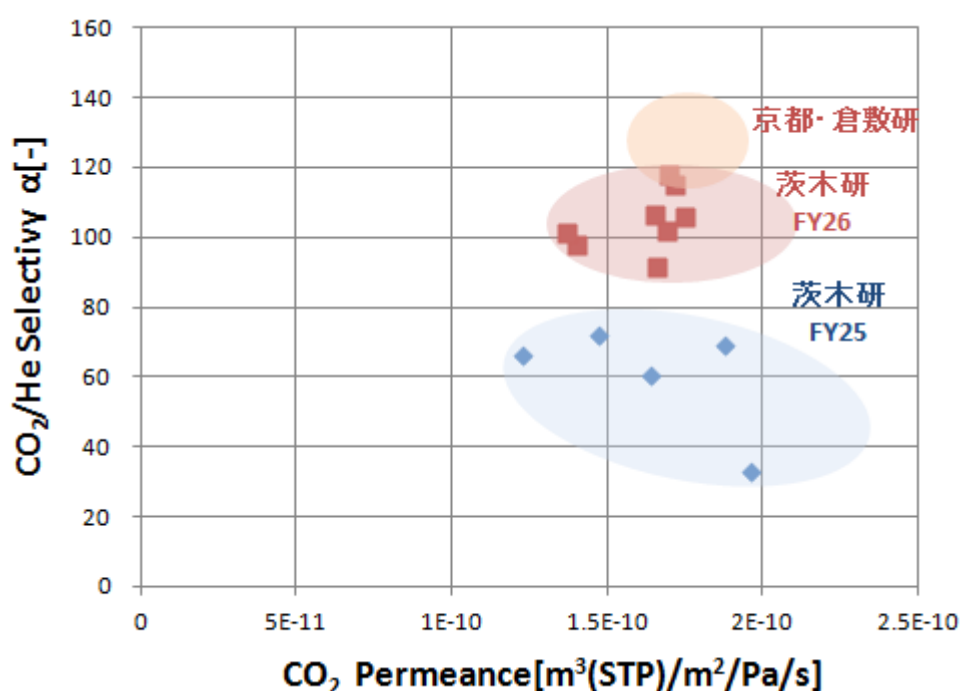


図 3-15 京都・倉敷研究室 小面積サンプルとの比較結果

2. 2) 実機型膜モジュール

2. 2. 1 耐熱部材の検討

膜モジュールの設計を行う上では平膜の性能を十分に発現しうる構造・機能を有していることが必要となる。現在開発を行っている分子ゲート膜では膜システムの湿度を制御できることやガス透過のドライビングフォースとなる膜間分圧差を維持出来るような構造を考慮することが重要である。膜性能の湿度依存性の低い分離膜材料の開発が必要であるが、モジュール構造および膜分離システム全体においても相対湿度を保持できるようにする必要もあり、透過側スリーブ構造モジュール(図 3-16)が適していると考え、検討を進めてきた。

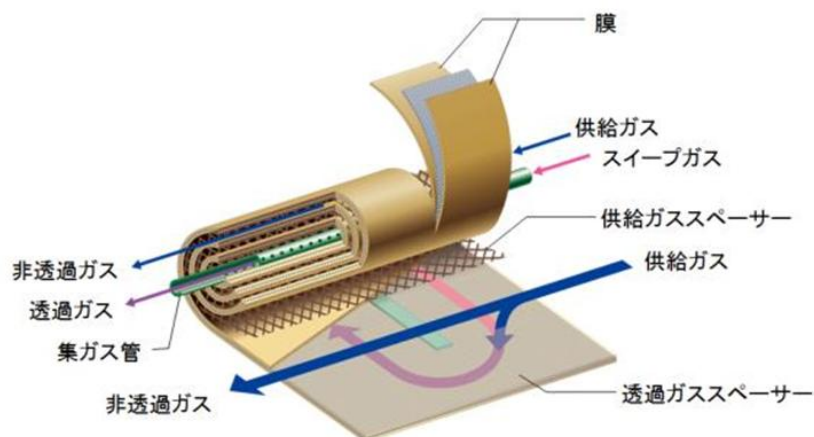


図 3-16 スイープ構造モジュール模式図

2インチモジュールの試作品の外観を図3-17に示す。試作条件の改良により、リークなき試作条件を見出すことができた。

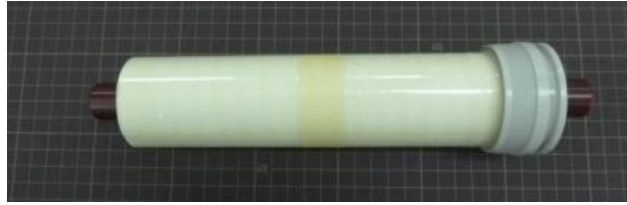


図 3-17 2 インチモジュール外観

試作したモジュールの性能評価条件の確立のために種々の湿度条件にて性能評価を行い、安定して長時間評価可能な湿度条件の検討を行った。湿度条件を変えて評価した結果を図 3-18 から図 3-20 に示す。図中には中湿度条件および低湿度条件での平膜の評価結果を併記している。中湿度条件で評価した際に、平膜では安定した性能を示すものの、モジュールでは経時で He パーミアンスが上昇し、選択性が低下する挙動が見られた。その要因として、モジュールでは平膜に比較して回収率が高く、CO₂の透過に伴って水蒸気も透過し、濃縮側において湿度が大きく低下し、化合物 B が析出して膜にダメージを与え、He パーミアンスが上昇し選択性が大きく低下することが考えられる。実際に低湿度条件で性能評価した平膜に関しては、初期は分離性能発現するものの、経時で Q_{He} が上昇し性能低下しており、中湿度条件で評価したモジュールと経時での性能挙動が酷似している。供給ガス湿度および流量の調整により濃縮側の湿度を制御することで、モジュール性能の経時での安定化が可能となった。

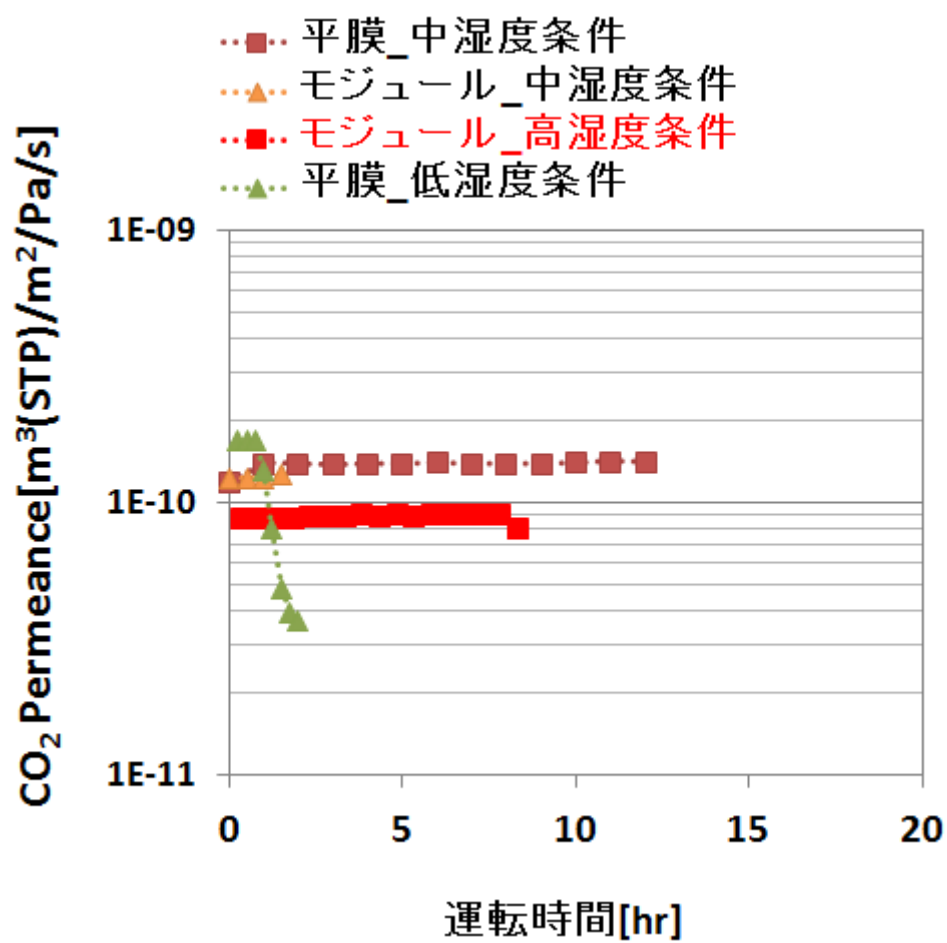


図 3-18 加圧下におけるモジュールおよび平膜の CO₂ パーミアンスの経時変化

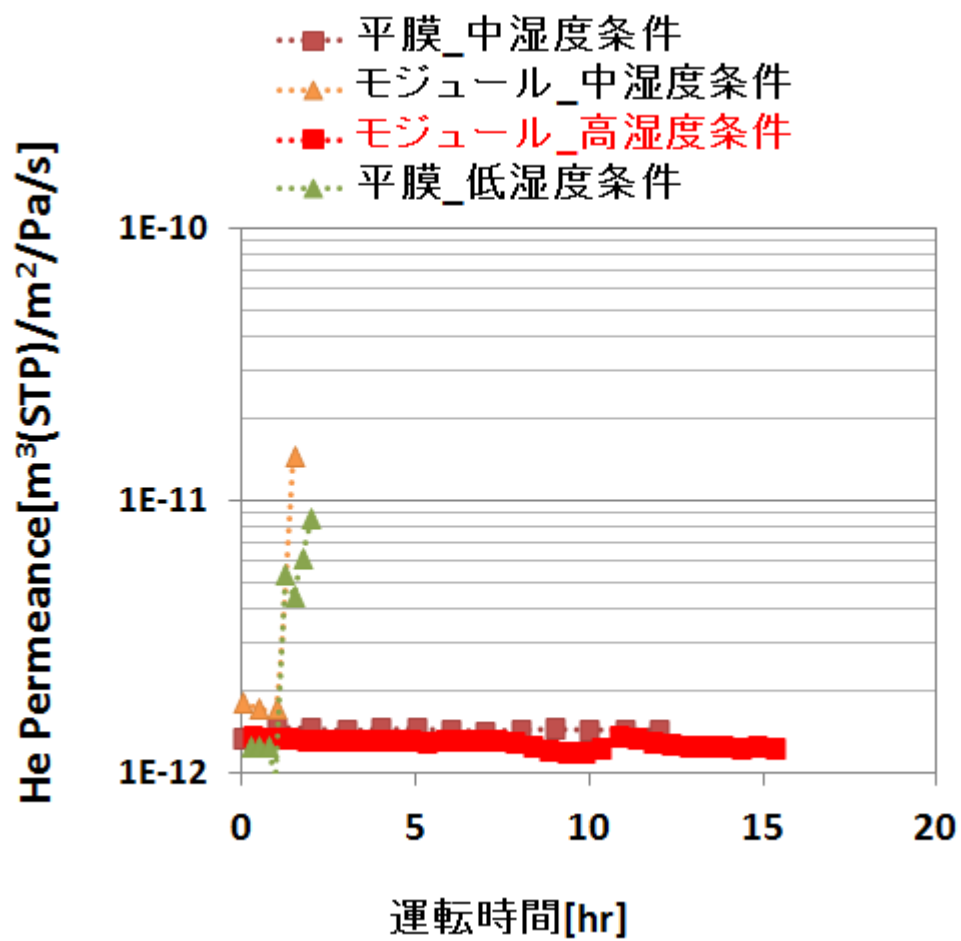


図 3-19 加圧下におけるモジュールおよび平膜の He パーミアンスの経時変化

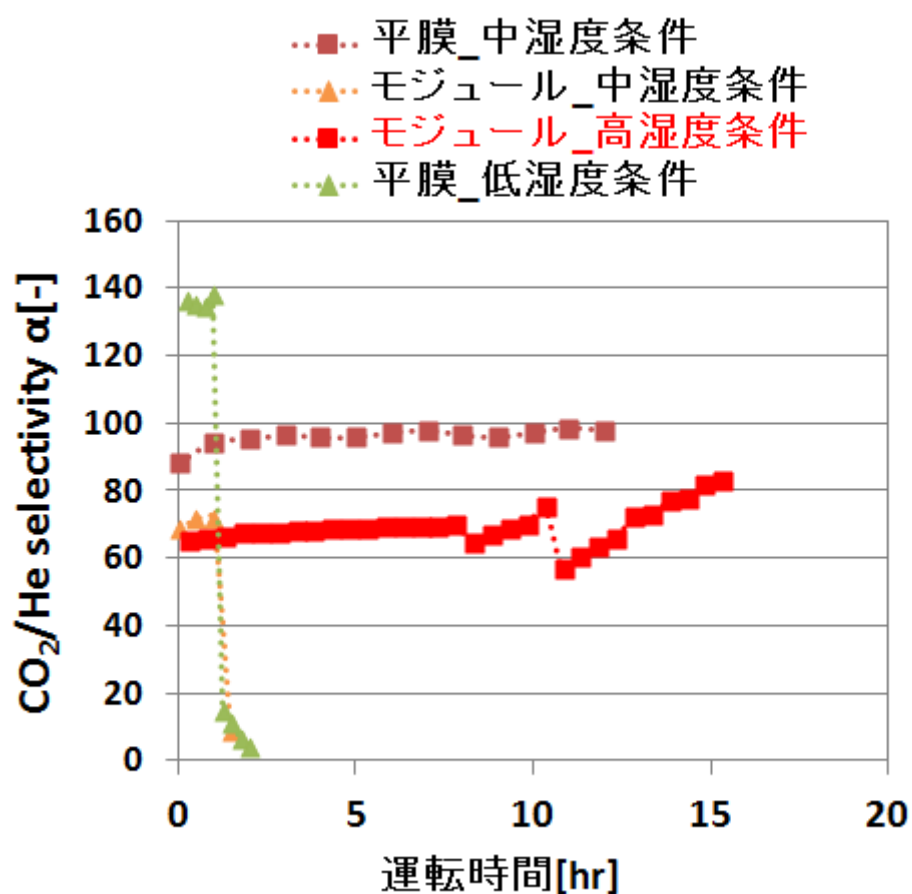


図 3-20 加圧下におけるモジュールおよび平膜の選択性の経時変化

安定して評価可能な条件が確認できたため、n 数を増やしての評価を実施した。また、富津研究室と協働で平膜性能の各種測定条件依存性データからシミュレーションによるモジュール性能予測をおこなった。それらの比較結果を図 3-21 に示す。2 インチモジュール性能はある程度のバラツキの範囲内で安定して分離性能を発現しており、またシミュレーションとも近い数値を示すことが確認された。

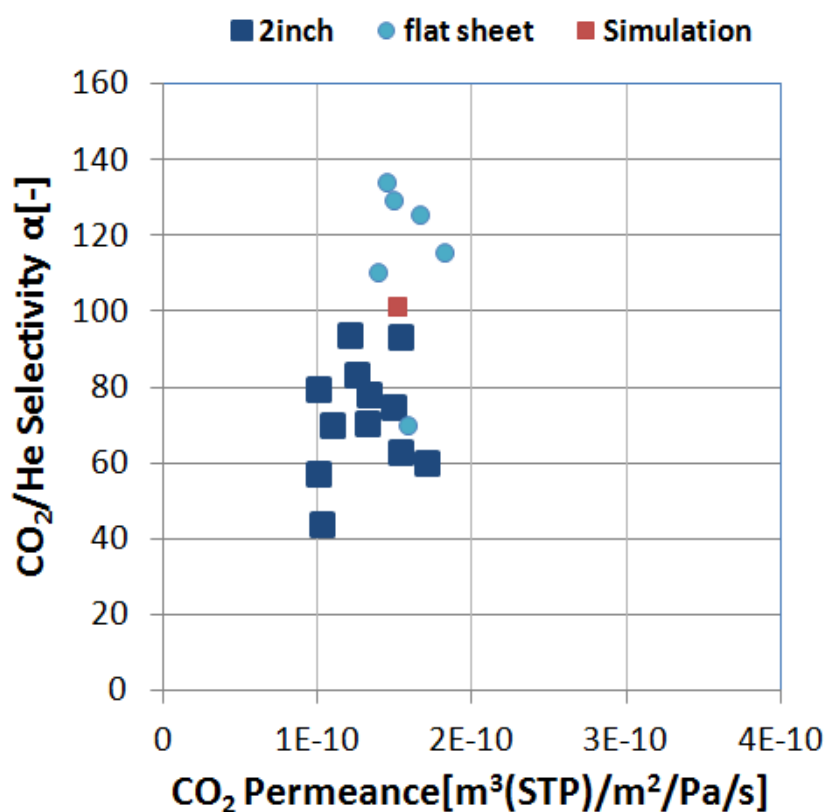


図 3-21 加圧下における平膜-モジュール-シミュレーションでのモジュール性能の比較

また、2 インチモジュールの試作条件を踏襲して 4 インチモジュールへのスケールアップを実施した。試作したモジュール外観を図 3-22 に示す。



図 3-22 実機型膜モジュール外観（左 2 インチ、右 4 インチ）

4 インチモジュールの試作評価結果を図 3-23 に示す。4 インチモジュール性

能は2インチモジュール性能のバラツキの範囲内に収まっており、スケールアップをしても2インチモジュール同等の性能を発現できることを確認した。

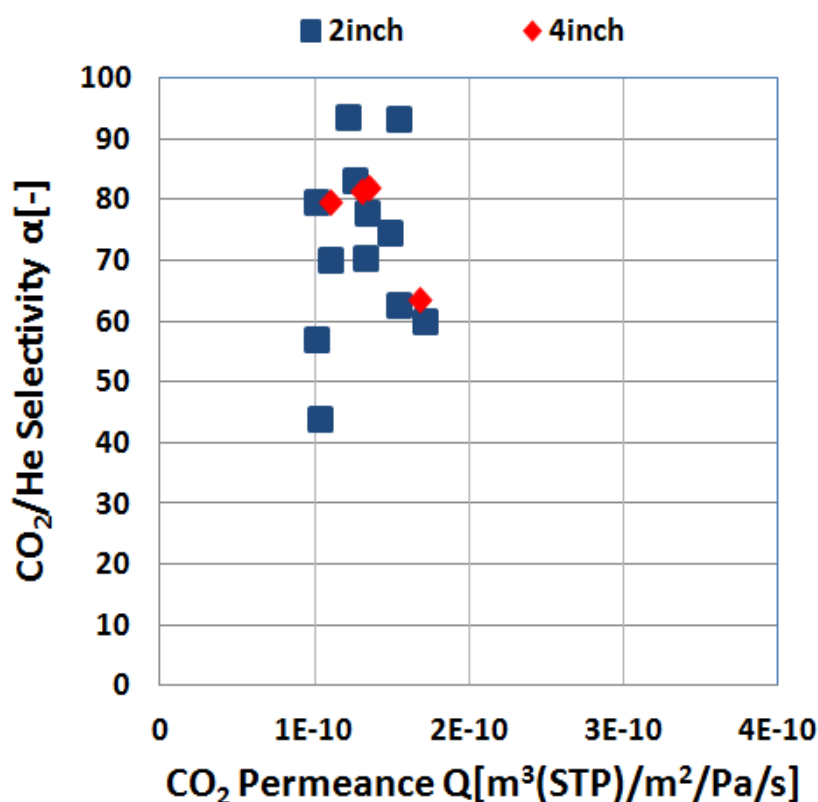


図 3-23 4 インチモジュール試作評価結果

試作した膜モジュールのプロセス適合性評価を行った。本来であれば IGCC の実ガスでのモジュール試験を行うべきところであるが、そのようなガスを供給できる設備は保有していないため、耐圧性と不純物耐性を切り分けて評価を行った。

耐圧性の評価は、京都研究室保有の高圧試験装置を使用して行った。＜1MPa から 2.4MPa に昇圧した際の CO₂ パーミアンスおよび He パーミアンスの評価結果を図 3-24 に示す。実使用圧力である 2.4MPa での評価においても He パーミアンスの上昇はほとんどなく、膜およびモジュール構造の耐圧性を確認することができた。CO₂ パーミアンスについて、平膜での値と比較した結果を図 3-25 に示す。モジュールの CO₂ パーミアンスは平膜に比較すると低いものの、圧力依存性の挙動は同じであることを確認した。

耐不純物性評価は、表 1 に示す組成のガスにある期間曝露した前後の性能変化を指標とした。結果を図 3-26、図 3-27 に示す。曝露前後で若干の性能低下が発生した。

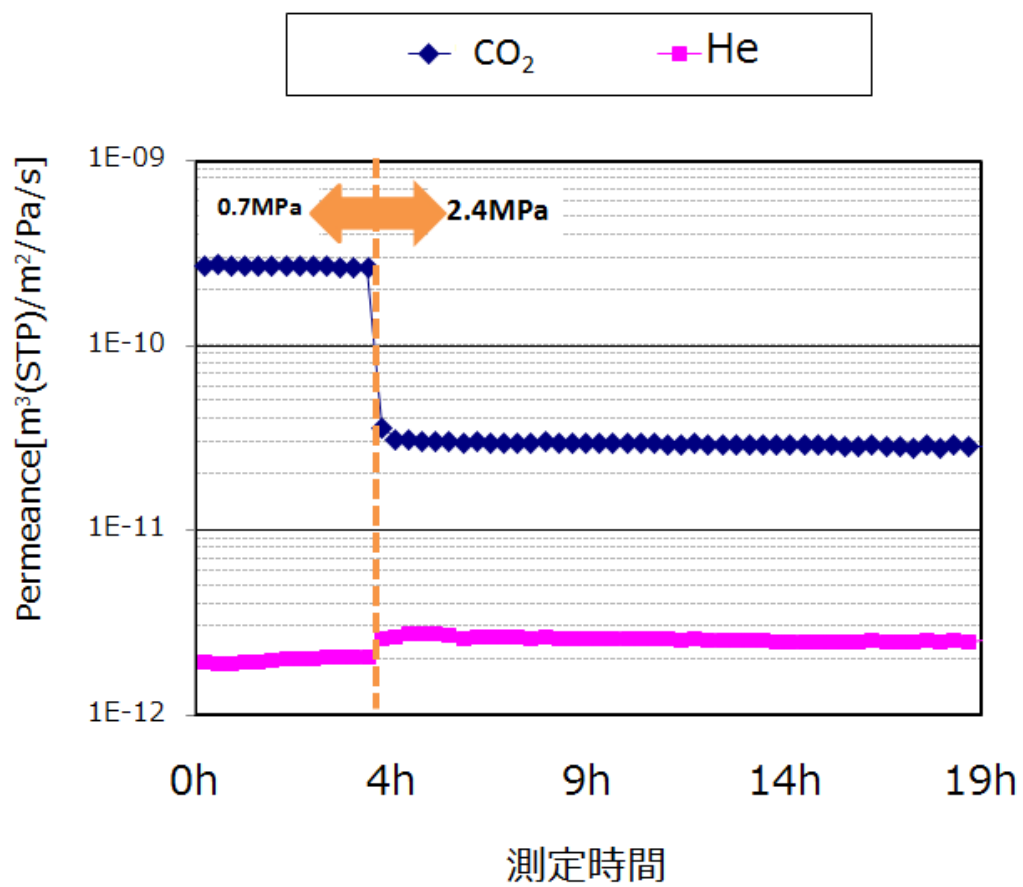


図 3-24 モジュール高圧試験時のパーミアンスの経時変化

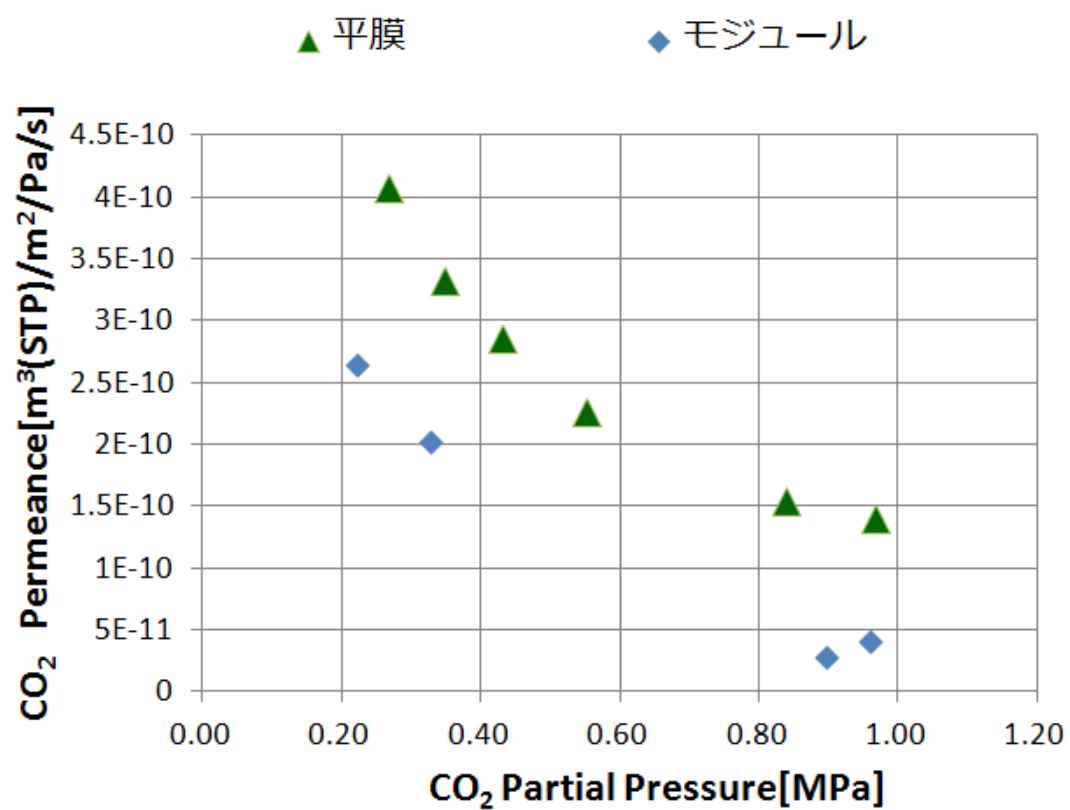


図 3-25 平膜およびモジュールの CO₂ パーミアンスの CO₂ 分圧依存性

表 1 曝露試験ガス組成

ガス種	CO ₂	H ₂	CH ₄	CO	H ₂ S
単位	%	%	%	%	ppm
比率	35.0±7.4	55.0±8.7	3.7±0.7	2.8±1.0	55.0±8.7

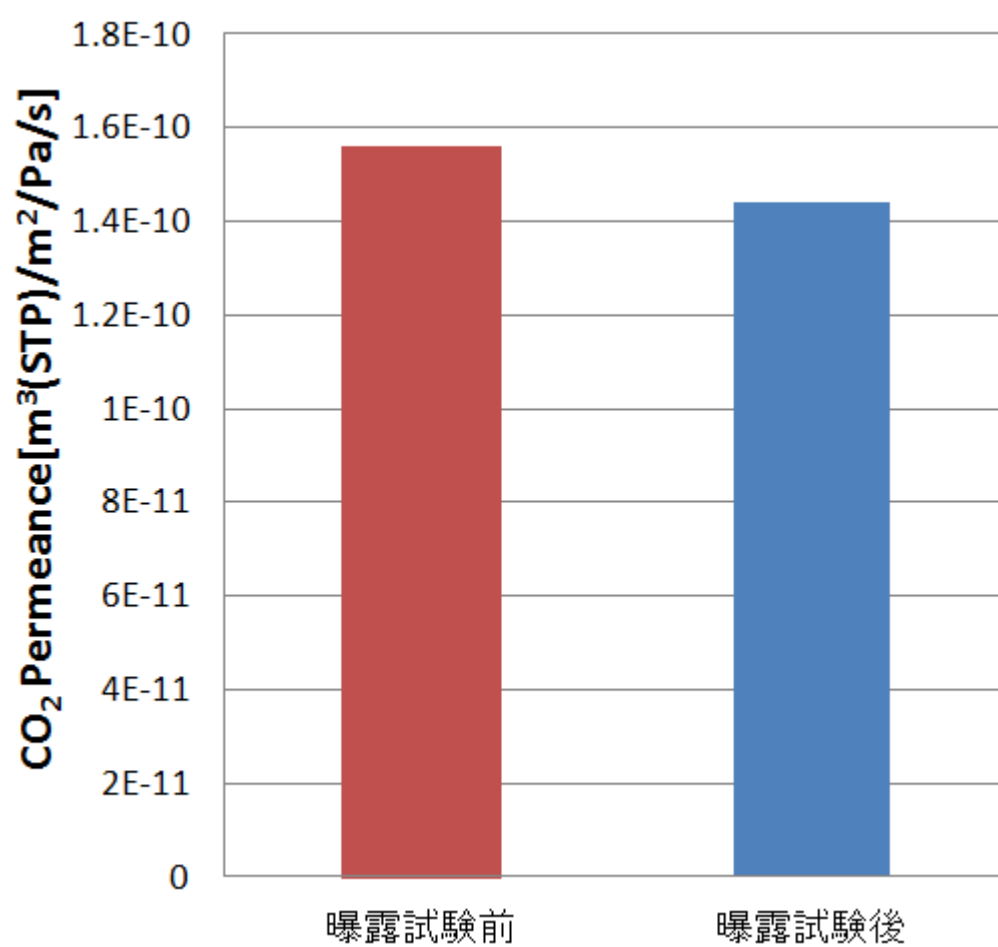


図 3-26 曝露試験前後での CO₂ パーミアンズ変化

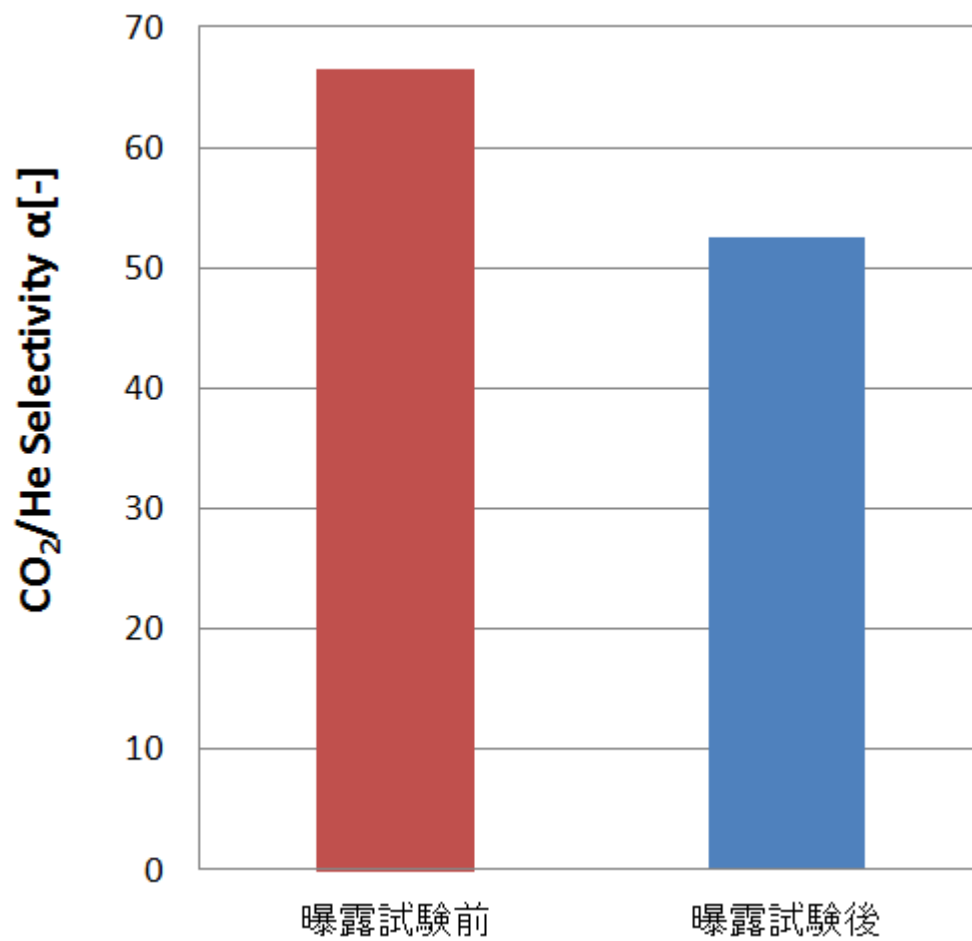


図 3-27 暴露試験前後での CO₂/He 選択性変化

2. 3) 膜モジュールの大型化について

膜モジュールの大型化に伴う技術課題を抽出するため実機型膜モジュールの作製をおこなった(直径：約 10cm、膜トータル長さ：約 1m) (図 3-28)。



図 3-28 実機型膜モジュール

3) 膜分離システムの開発

「分離膜技術の開発」と「実機膜モジュールの開発」で得たデータに基づき分離膜モジュールのシステム検討を行った。

3. 1) 膜分離システムの検討

実システムを調査し、開発した分離膜でのプロセス検討等から二段システムから一段システムへの変更提案を行う等分離膜システムの最適化を行った。特に膜性能と CO₂ 分離・回収コストとの関係を推算し、目標達成への要求膜性能を明らかにした。更に当該膜特性に適した膜分離システムを検討し、効果的な膜分離システムを提案した。

(1) 検討前提条件

1) 目標性能

コスト目標	1,500 円/ton-CO ₂
CO ₂ 回収量	1,000,000 ton/年 (63,000 Nm ³ /h)
CO ₂ 濃度	95 vol %以上
CO ₂ 回収率	90 %以上

2) 前提条件

図 3-29 に示す様に、石炭ガス化炉から発生する高圧の石炭ガス化ガス中の一酸化炭素をシフト反応によって、二酸化炭素と水素に転換したガスを想定する。本検討では CO₂、H₂、H₂O の 3 成分混合ガスとして検討した。

組成	CO ₂	36.3 vol % (ドライベース)
	H ₂	63.7 vol % (ドライベース)
	H ₂ O	計算条件によって設定
非透過側圧力		2.4 MPaA
透過側圧力		大気圧付近

石炭ガス化プロセスフロー

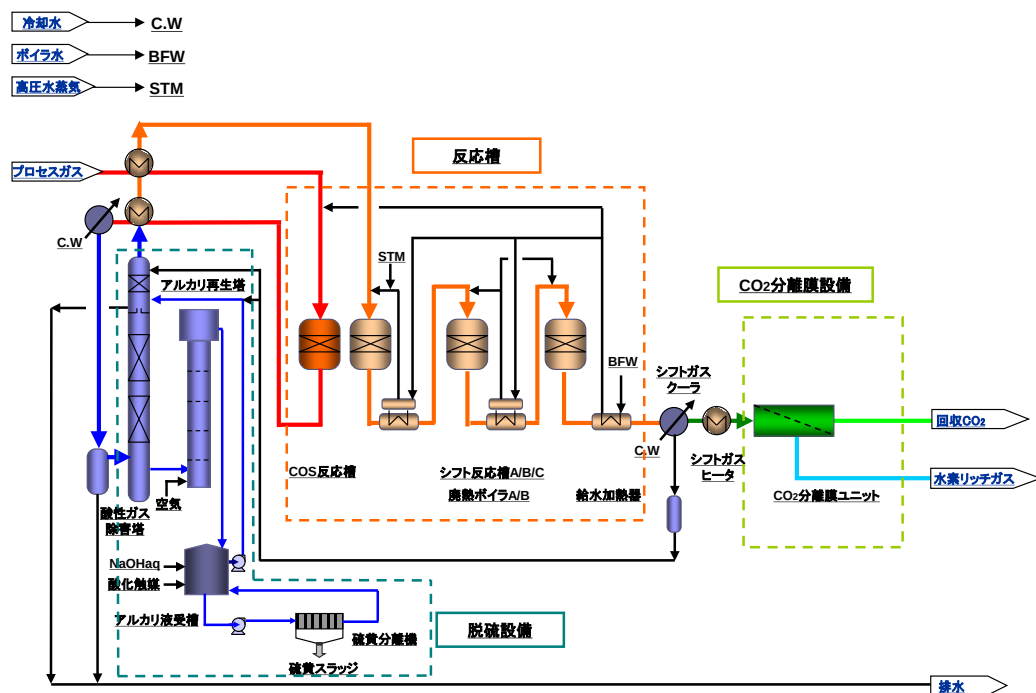


図 3-29 石炭ガス化プロセスフロー

(2) 検討内容・成果

1) 投入エネルギーをミニマムにする一段システムの提案

図 3-30 に示す様に、当初、高純度及び高回収率を達成させるために多く使われている二段システムで検討を開始した。しかし、中間昇圧エネルギーの必要性やシステムの必要性、又、当該膜の特性から一段膜システムの優位性を提案し、外部からの投入エネルギーをミニマムにするべく、目標とする基本的な条件における膜モジュール性能を推算提案し、膜開発の指標とした。

その結果、「 $Q_{CO_2}=3 \times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ 、 $\alpha=125$ 」によって、開発目標 1,500 円/t-CO₂の達成が可能であることを見出した（図 3-4 の再掲）。さらに、開発目標 1,000 円/t-CO₂のための要求膜性能についての指標も見出すことが出来た。

開発目標性能値の見直し検討

➤ 選択性を高め開発目標 ($\leq 1,500$ 円/t- CO_2) を達成

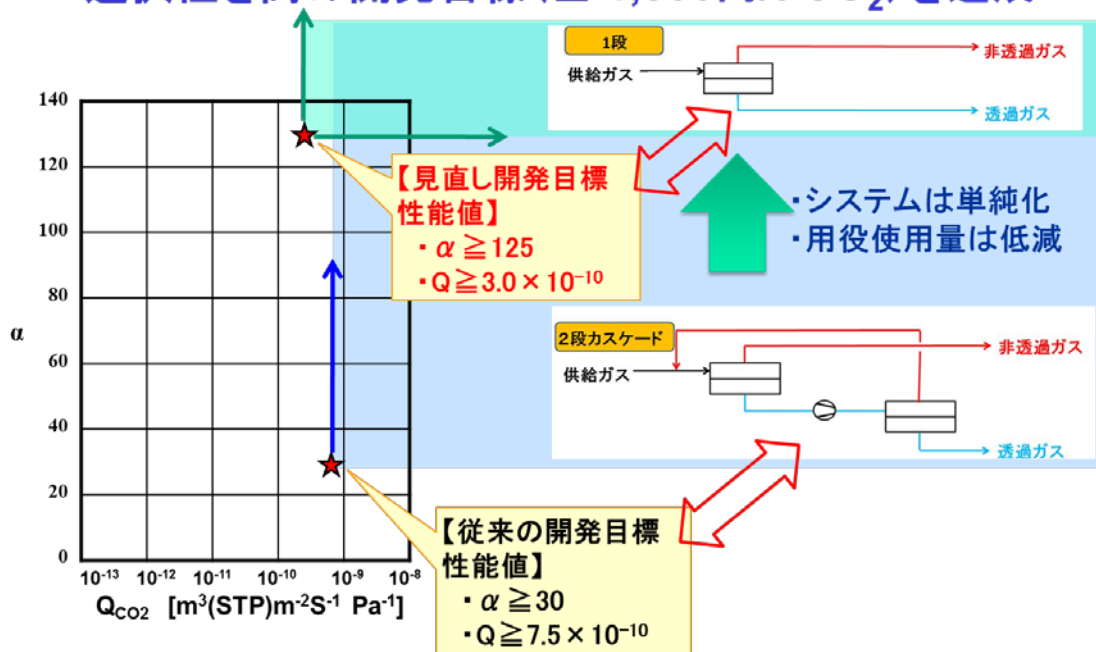


図 3-30 開発目標性能値の見直し検討

透過速度と CO_2 回収コスト

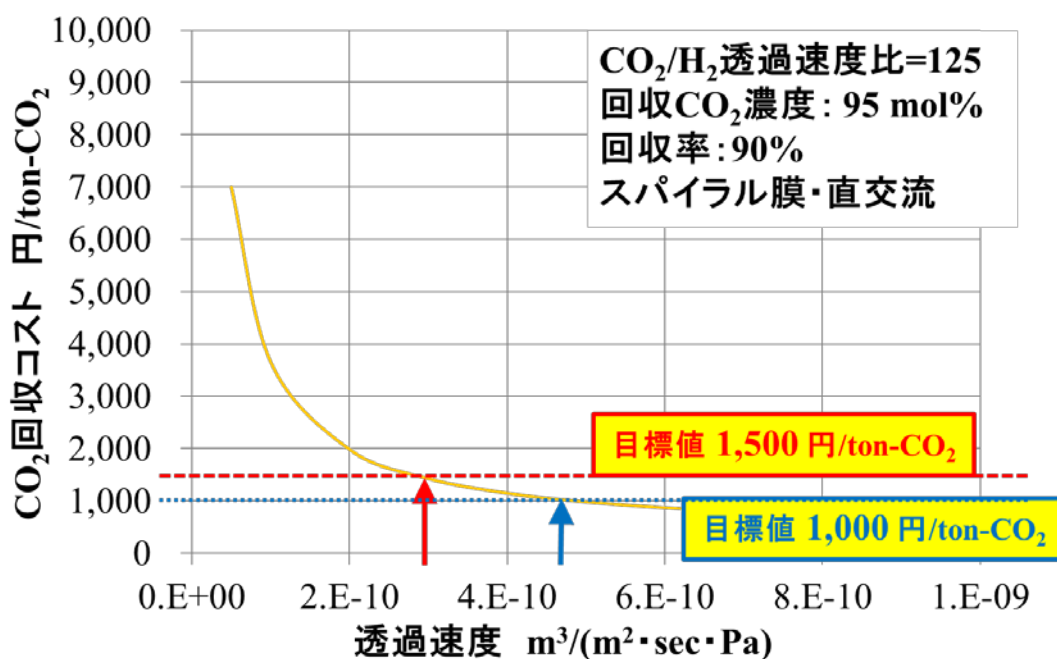


図 3-4 透過速度と CO_2 回収コスト (再掲)

2) 膜特性に適した膜システムの検討

(1) 検討前提条件に示した条件に於いて、前章に示した高压試験で得られた分離性能データを数値シミュレーションに適用し、実機規模設備において90%以上のCO₂を回収するために必要な膜面積を算出した。図3-31は、使用した分離性能を示したものである。なお、本計算では透過側空間のあらゆる位置で湿度が50%RH以上となるように各段の膜面積を設定した。

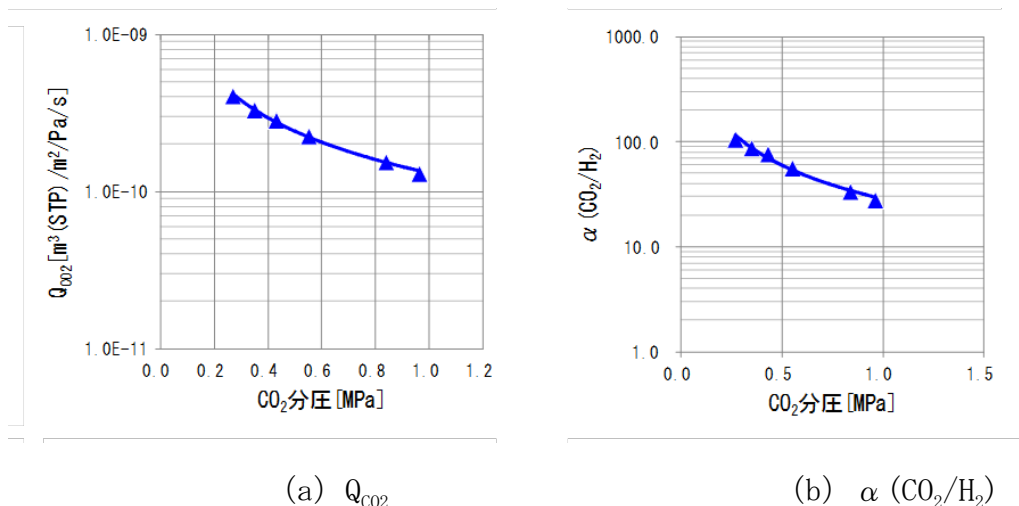
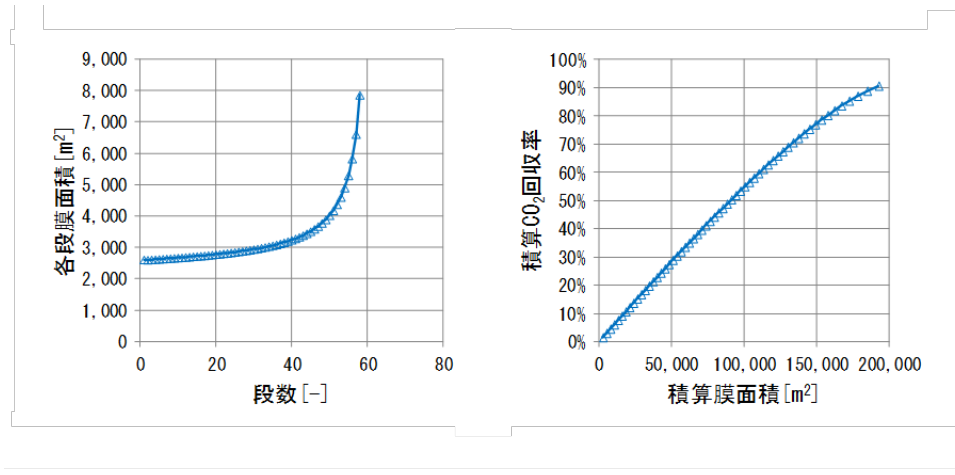


図 3-31 計算前提とした膜分離性能

図 3-32 (a) は各段の膜面積を示しており、膜面積は透過量が最も多く水蒸気の減少が大きい1段目の2,500 m²から徐々に広くなり、最終段では8,000 m²程度まで増加している。また、図 3-32 (b) は積算の膜面積と CO₂ 回収率の関係であり、90%の CO₂ を回収するためには19万 m²程度の膜面積が必要であることを示している。



(a) 分割段数と各段の膜面積 (b) 積算膜面積と CO₂ 回収率

図 3-32 膜面積と CO₂ 回収率

(2) 膜エレメント内部の分布

図 3-33～図 3-35 に数値シミュレーション結果の一例として、モジュール内の分布図を示している。実際の計算ではモジュールを直列に配置しており、図はその一部である。

図 3-33 は非透過側及び透過側の相対湿度分布である。本計算では各モジュール入口において湿度が一定となるように非透過のモジュール間で水蒸気を供給している。また、各段のモジュール並列数は、透過側の最低湿度が 50%RH 以上になるように設定した。

図 3-34 に静圧分布を示す。非透過側は圧力損失により供給圧力から徐々に静圧が低下しており、後段ほど静圧は低くなる。一方、透過側は各段出口の圧力を大気圧一定としており、各段の透過ガス量に応じた圧力損失によって内部の静圧差が生じている。

図 3-35 に CO_2 分圧分布を示す。非透過側では静圧の低下と CO_2 ガスの透過により CO_2 分圧は徐々に低下し、最終段では透過側と同程度の分圧となる。

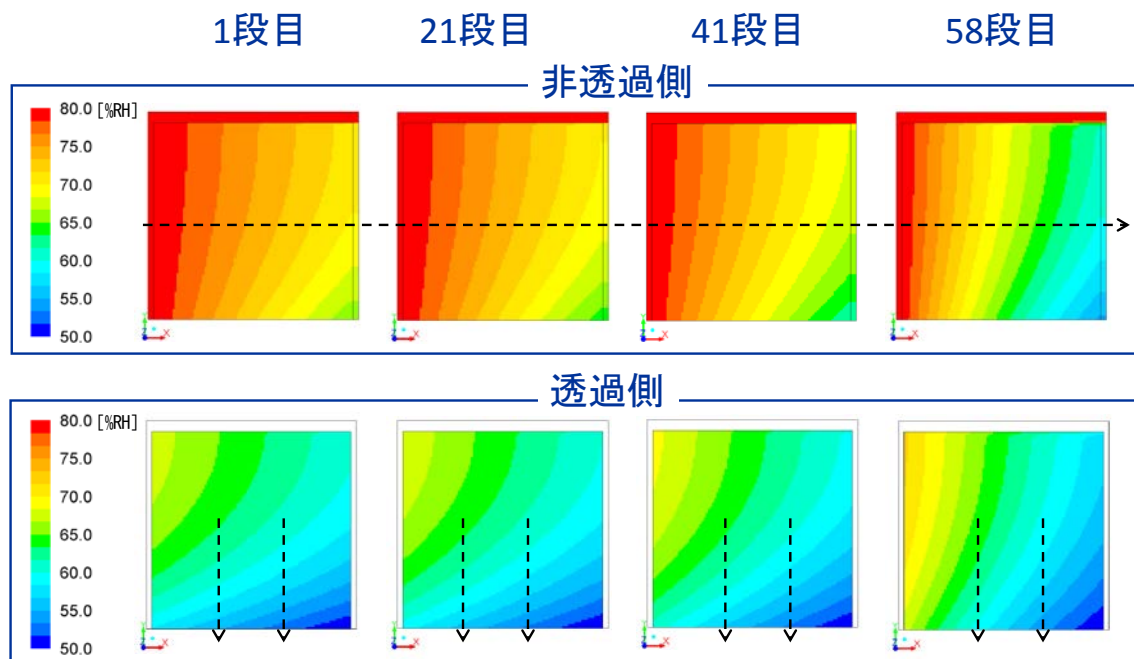


図 3-33 相対湿度分布図

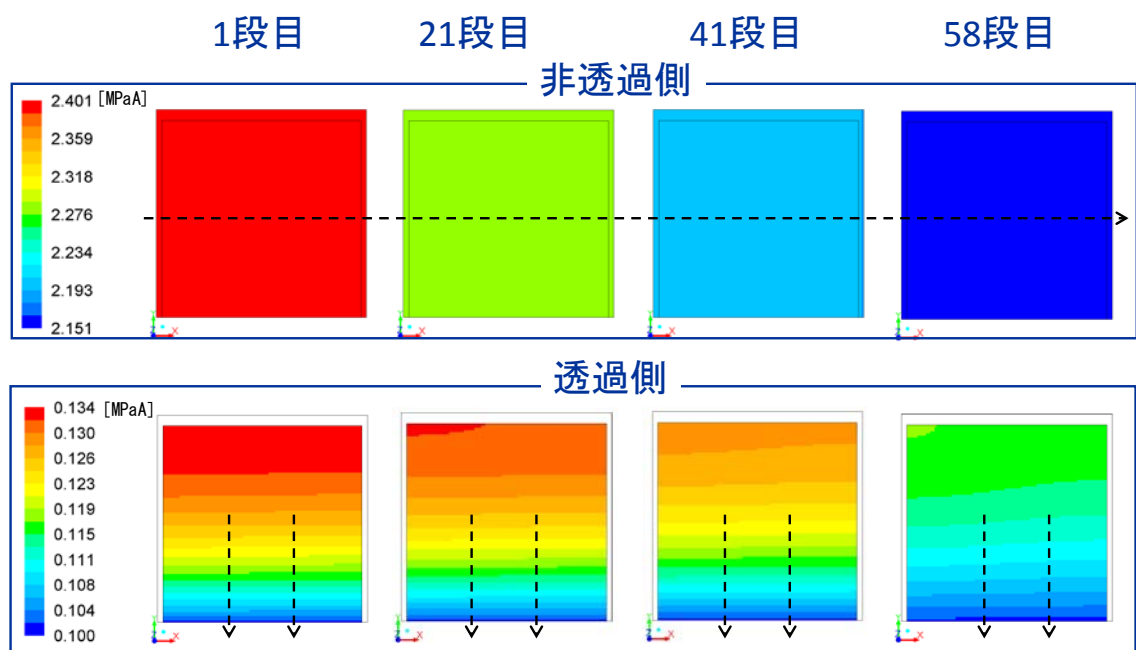


图 3-34 静压分布图

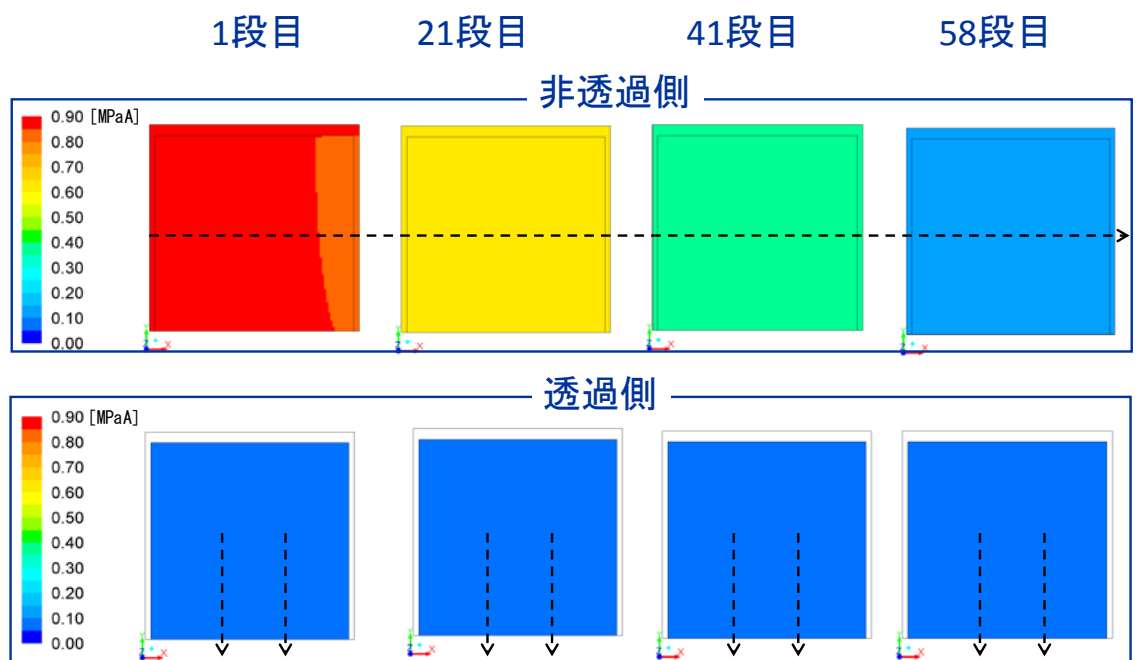


图 3-35 CO₂ 分压图

(3) コスト及びエネルギー試算

1) エネルギー原単位試算

前章で検討した結果に基づき、エネルギー原単位の試算を行った。必要エネルギーのほとんどは、膜の性能発揮に必要な水分を確保する水蒸気である。膜分離に必要な圧力は石炭ガス化ガスの圧力をそのまま使用するので、供給ガスの圧縮による昇圧動力は不要である。表3-21における電力は、照明、制御等の一般的な雑電力が主である。

表3-21に示すように、エネルギー原単位は0.55 GJ/t-CO₂と非常に小さく、吸収法等の他のプロセスに比較して1/3程度となっている。

表3-21 エネルギー原単位試算

項 目	計算値	単 位
蒸気使用量	24.1	t/h
蒸気原単位	0.192	t/t-CO ₂
電力使用量	50	kW
電力原単位	0.4	kWh/t-CO ₂
合計エネルギー原単位	0.55	GJ/t-CO ₂

2) コスト試算

前章で検討した結果に基づき、コスト試算を行った。計算結果は単膜試験のデータを使用しており、実機を製作した場合の効率、いわゆる「モジュール効率」は考慮していない。表3-22に示すように、1,500円/t-CO₂を達成している。

表3-22 コスト試算結果

項 目	計算値	単 位
CO ₂ 回収量	125.3	t/h
膜面積	190,000	m ²
蒸気使用量	24.1	t/h
モジュール効率	なし	
設備費	600	円/t-CO ₂
膜エレメント及びモジュール容器費用	350	円/t-CO ₂
変動費	540	円/t-CO ₂
処理費合計	1,490	円/t-CO ₂

3. 2) 膜プラントの概念設計

膜分離システムの検討の結果に基づいて、100万t／年CO₂分離回収規模での実機設備のモジュールのサイズ、配列等を検討し、実用化システムの概念設計を行った。供給ガス、製品ガス、目標性能等の操業条件やメンテナンス性などを考慮したCO₂分離大型設備を提案し、CO₂分離・回収コスト、エネルギーの両面から、膜分離システムの有効性を確認した。

(1) 前提条件

概念設計の前提条件を以下に示す。その他の条件は(1) 検討前提条件を参照のこと。

供給ガス	流量	20,000 Nm ³ ／h
	温度	85℃
モジュール	口径	8インチ
	モジュール容器長さ	10m／本

(2) モジュールのユニット化計画

1) モジュールスキッド

モジュールを4本ひとまとめにしたモジュールスキッドを1単位とし、このスキッドを多数積み重ねてシステムを構成した。メンテナンス等の取り外し等は、すべてモジュールスキッド単位で行うこととした。

2) ブロック

モジュールスキッドの総数は、360である。このモジュールスキッドを6系列のブロックに分けてある。各ブロックは、各々独立に停止してメンテナンスが行えるようにした。この時でも、他のブロックは操業を続けることが出来、設備全体を停止する必要がない。

3) 建屋

モジュールスキッド群は建屋内に収納し、メンテナンス時には取り外して工場で検査、修理、交換をするため、トレーラーでモジュールスキッドの搬入、搬出できるように建屋の中央に通路を設けている。またトレーラーへの積み込み、積み下ろしをするために、天井には走行クレーンを設置している。

次項に設備イメージ図を示す。

当該膜分離システム設備の必要敷地面積は、図 3-39 の通り、周辺を入れても約 2 km^2 ($45 \text{ m} \times 40 \text{ m}$) 程度である。既存システムでは約 1 万 m^2 程度 ($100 \text{ m} \times 100 \text{ m}$) と言われており、膜分離システムは大幅な敷地面積縮減の可能性を持っている。

(3) 膜分離設備

膜分離設備のモジュールスキッドを図 3-36 に、モジュールスキッドで構成されるブロックの集合体を図 3-37 に示す。また、各ブロックの集合と配管レイアウトを図 3-38 に、設備全景を図 3-39 に示す。

モジュール4本で1スキッドを構成

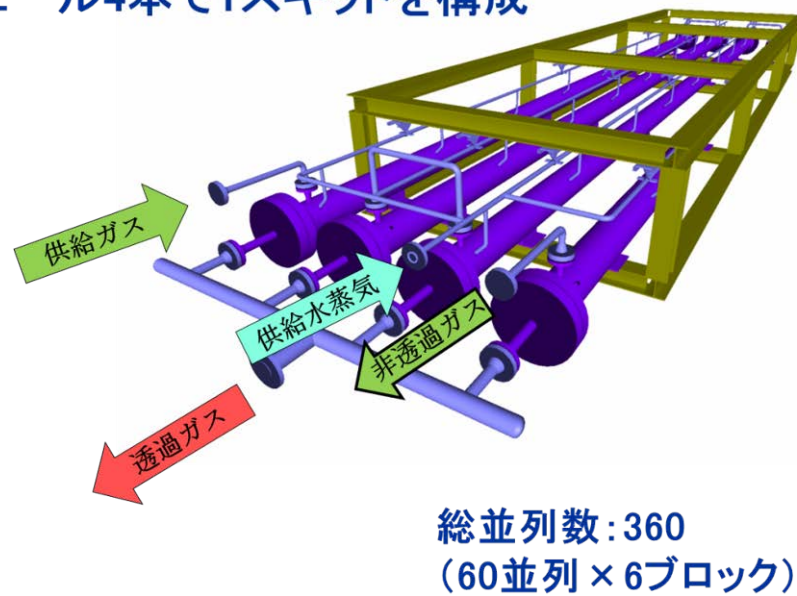


図 3-36 モジュールスキッド

1ブロック 60スキッドユニット

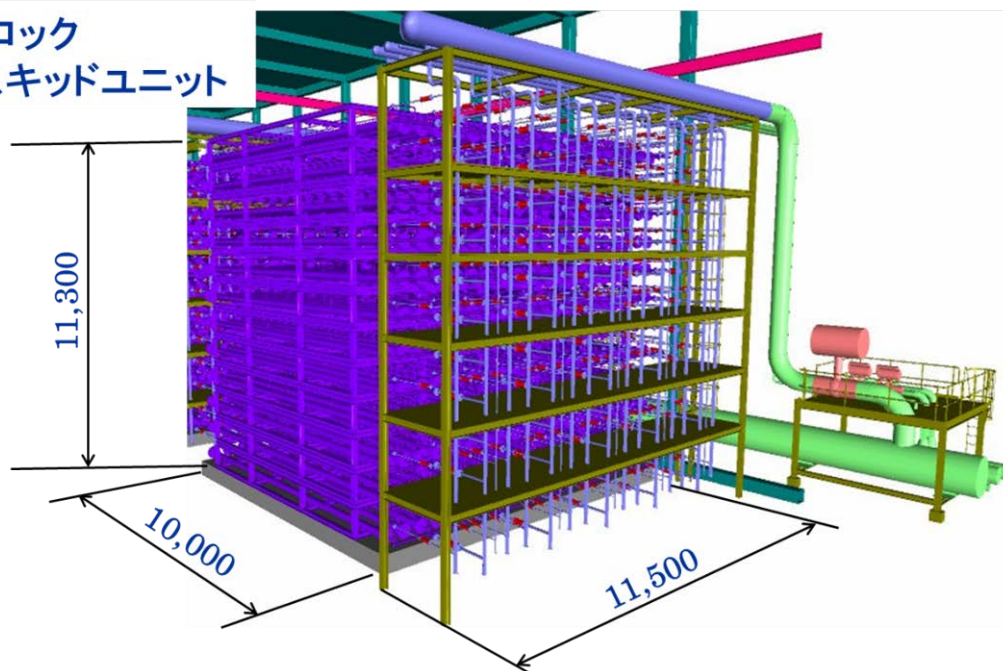


図 3-37 スキッド集合体ブロック

- ・6ブロック毎にガス供給・回収
- ・1ブロックだけメンテナンス可能

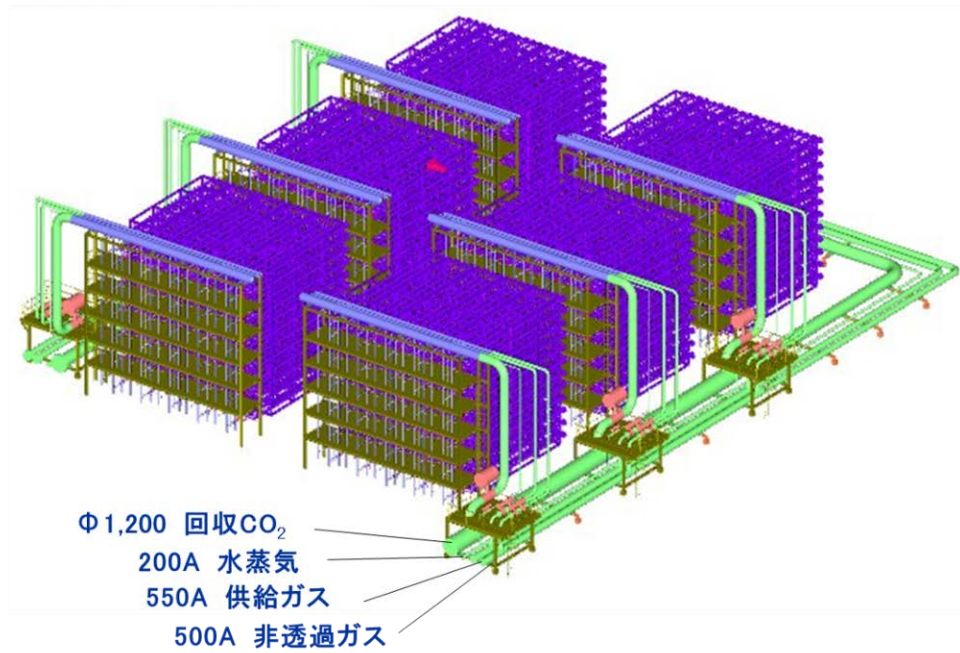


図 3-38 ブロック配置及び配管接続

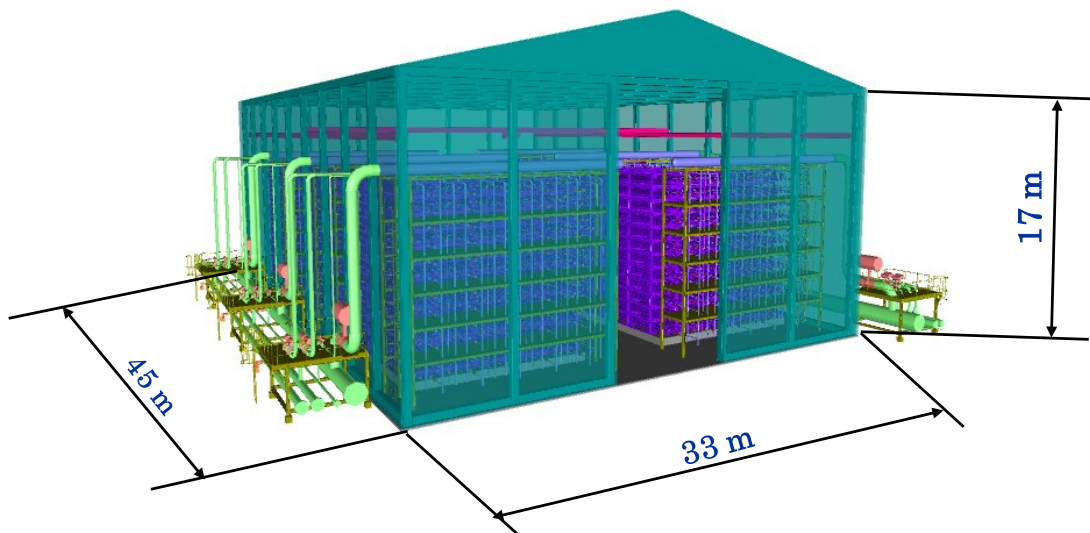


図 3-39 設備全景

3-1-3 特許出願状況等

表 3-2 特許・論文等件数

要素技術	論文数	論文の被引用度数	特許等件数(出願を含む)	特許権の実施件数	ライセンス供与数	取得ライセンス料	国際標準への寄与
製膜技術	12		16	0	0	0	0
モジュール化技術			1	0	0	0	0
計	12		17	0	0	0	0

表 3-3 論文、投稿、発表リスト

	掲載先	題目	
論文	Polymer Bulletin,	Polymeric Membranes Composed of Polystyrenes Tethering Amino Acids for Preferential CO ₂ Separation over H ₂	平成24
	J of Polymer Science PartB:Polymer Physics	Structural analysis of poly(amidoamine) dendrimer immobilized in cross-linked poly(ethylene glycol)	平成24
	J. Membr. Sci.	Poly(amidoamine) dendrimer/poly(vinyl alcohol) hybrid membranes for CO ₂ capture	平成24
	Desalination and Water Treatment journal	Development of Poly(amidoamine) Dendrimer/Poly(vinyl alcohol) Hybrid Membranes for CO ₂ Separation	平成25
	Energy Procedia	MolecularGate Membrane: Poly(amidoamine) Dendrimer/polymer Hybrid Membrane Modules for CO ₂ Capture	平成25
	Energy Procedia	Development of poly(amidoamine) dendrimer/polyvinyl alcohol hybrid membranes for CO ₂ capture at elevated pressures	平成25
	Journal of Materials Chemistry A	Effect of Phase-separated structure on CO ₂ separation performance of poly(amidoamine) dendrimer	平成25

		immobilized in a poly(ethylene glycol) network,	
	Energy Procedia	PAMAM Dendrimer Containing Polymeric Membrane for Preferential CO ₂ Separation Over H ₂ - Interplay between CO ₂ Separation Properties and Morphology	平成25
	Energy Procedia	Optimization of CO ₂ concentration captured by membrane technology - Possibility of reduction in CO ₂ capture energy and cost	平成25
	Membranes	Effect of cross-linking on the mechanical and thermal properties of poly(amidoamine) dendrimer/poly(vinyl alcohol) hybrid membranes for CO ₂ separation	平成26
	Energy Procedia	Development of Poly(Amidoamine) Dendrimer/ Poly(Ethylene Glycol) Hybrid Membranes for CO ₂ Capture at Elevated Pressures	平成26
	Journal of Membrane Science	A compatible crosslinker for enhancement of CO ₂ capture of poly(amidoamine) dendrimer-containing polymeric membranes	平成26
投稿	電気評論	膜によるCO ₂ 分離技術の進展	平成23
	エネルギー・資源	新規CO ₂ 分離回収技術開発の動向	平成24
	高分子論文集	ポリアミドアミンデンドリマーを用いた二酸化炭素分離膜の開発	平成24
発表（国内学会） その他23件	分離技術会年会（明治大学生田キャンパス）	RITEにおけるCO ₂ 分離膜開発	平成23.6
	日本膜学会第34年会（早稲田大学西早稲田キャンパス）	ポリアミドアミンデンドリマー/架橋ポリエチレングリコールハイブリッド膜の構造制御と分離特性	平成24.5
	日本膜学会第35年会（早稲田大学西早稲田キャンパス）	デンドリマー/PVAハイブリッド膜の開発とCO ₂ 分離特性,	平成25.5

発表（国際 学会） その他 17 件	Carbon Capture Workshop (Stanford University)	Advanced CO ₂ Separation Using Molecular Gates	平成 23.5
	I2CNER International Workshop (Kyushu Univ)	Poly(amidoamine) Dendrimer/Polymer Hybrid Membranes for CO ₂ Capture	平成 24.2
	AMS8(the 8th Conference of Aseanian Membrane Society)	Effect of cross-linking on the mechanical and thermal properties of poly(amidoamine) dendrimer/poly(vinyl alcohol) hybrid membranes for CO ₂ separation, , Jul. 17, 2013	平成 25.7
その他発表	『CCS技術の新展 開』 シーエムシー出版	CCS技術の新展開 【第二編 CO ₂ 回 収技術】	平成23
	『エネルギー・化 学プロセスにおけ る膜分離技術』 (S&T出版)	第4章 二酸化炭素(CO ₂)分離膜 第 1節	平成26

3-2 目標の達成度

表 3-4 に事後評価に対する各要素技術の達成度を示す。ほとんどの項目で事後評価目標を達成しており、プロジェクトの全体目標を達成することができた。

表 3-4 目標に対する成果・達成度の一覧表

要素技術	目標・指標 (事後評価時の目標)	成果	達成度
1. 分離膜技術の確立			
1) 分離性能の改良	CO ₂ 分離・回収コスト 1,500 円/t-CO ₂ を達成する CO ₂ /H ₂ 選択性、CO ₂ 透過速度を有する複合膜を作製する。	CO ₂ 分離・回収コスト 1,500 円/t-CO ₂ を達成する CO ₂ /H ₂ 選択性、CO ₂ 透過速度を有するラボレベルの複合膜を作製した。	達成
2) 耐不純物性	IGCC 等における代表的な不純物組成に対する不純物耐性を付与する。	今後の実ガスを用いた詳細検討のために、代表的な不純物である硫化水素を含む模擬ガスおよび実ガス(勿来)による曝露試験を実施し、膜の耐性を確認した。	ほぼ達成
3) 耐乾躁性	湿度 40%~80%RH の間で著しい機能の低下(CO ₂ 透過性 50%以下)の無い分離膜を開発する。	吸水性の高い PVA を使用することで、湿度 40~80%RH で安定な CO ₂ 分離性能を有する膜を開発した。	達成
4) 耐圧性	IGCC の高圧化(4MPa)に対応した耐圧性を有する分離膜を開発する。	膜および膜モジュールの高圧試験を行い、実運転圧力である 2.4MPa での耐圧性を確認した。	ほぼ達成
5) 耐久性	1,000 時間以上の連続運転で著しい機能の低下の無い分離膜を開発する。	連続運転試験を行い 1,000 時間以上の耐久性を確認した。	達成
6) その他のプロセス適合性	耐熱性の向上(100℃以上)を目指す。	膜材料の耐熱性を確認し、複合膜が 100℃以上の耐熱性を有することを確認した。	達成
7) 1,000 円/t-CO ₂ 以下を可能とする分離膜(CO ₂ /H ₂ 選択性が	分離膜の CO ₂ /H ₂ 選択性が 100 以上である分離膜の膜素材、支持膜材料を開発する。	CO ₂ /H ₂ 選択性が 125(世界トップレベル)であるラボレベルの分離膜を開発した。なお、1,000 円/t-CO ₂ 以下を達成する	達成

100) の開発		為には、CO ₂ /H ₂ 選択性が125で、CO ₂ 透過速度が4.6x10 ⁻¹⁰ 以上必要であることをシミュレーションにより確認した。	
2. 実機膜モジュールの開発			
1) 連続安定製膜	分離膜を連続安定製造するために必要となる要素技術の抽出とその要素技術を検討する。	分離膜を連続安定製膜するために必要な要素技術を抽出し、膜性能のバラツキに関して、広膜面積化試作により要素技術の確認を行った。	達成
2) 実機型膜モジュール	実機型膜モジュール（直径10cm、長さ20cm程度）を製作して、実システムあるいは近似した状態での試験を行い、実機型膜モジュールの技術を確認する。	実機型膜モジュール（直径10cm、長さ20cm程度）を試作し、実システムに近似した状態での試験を行い、実機型膜モジュールの技術を確認した。	達成
3) 膜モジュールの大型化	膜長が1m、直径が10cmの膜モジュールを製造する。	大型膜モジュール（直径10cm、膜全長約1m）を製作した。	達成
3. 膜分離システムの開発			
1) 膜分離システムの検討	実システムを調査し、開発した分離膜でのプロセス検討等から分離膜システムの最適化を行う。	実システムを調査し、開発した分離膜でのプロセス検討等から二段システムから一段システムへの変更提案を行う等、分離膜システムの最適化を行った。特に膜性能とCO ₂ 分離・回収コストとの関係を推算し、目標達成への要求膜性能を明らかにした。更に当該膜特性に適した膜分離システムを検討し、効果的な膜分離システムを提案した。	達成
2) 膜分離プラントの概念設計	膜分離プラントの概念設計を行い、CO ₂ 分離・回収コスト、エネルギーの両面から、膜分離システムの有効性を確認する。	膜分離プラントの概念設計を行い、CO ₂ 分離・回収コスト、エネルギーの両面から、膜分離システムの有効性を確認した。	達成

なお、「1.7) 1,000 円/t-CO₂以下を可能とする分離膜（CO₂/H₂選択性が100）の開発」については、中間評価（平成24年11月13日）において、システ

ム検討の結果から目標分離性能が再設定されたため、表 3-5 の通り改訂し記載する。

表 3-5 中間報告以降の目標に対する成果・達成度の一覧表

要素技術	目標・指標 (事後評価時の目標)	成果	達成度
1. 分離膜技術の確立			
7) 1,000 円/t-CO ₂ 以下を可能とする分離膜の開発	1,000 円/t-CO ₂ 以下で CO ₂ を分離・回収する技術を確認する。	1,000 円/t-CO ₂ 以下を達成する為には、CO ₂ /H ₂ 選択性が 125 で、CO ₂ 透過速度が 4.6×10^{-10} 以上必要であることをシミュレーションにより確認した。	達成

4. 事業化、波及効果について

4-1 事業化の見通し

地球温暖化対策としてCCSの実用化に向けた対応を速やかに進めることが求められており、CCSの実用化に資するため、コストを低減する技術、特に全コストの6割以上を占めるCO₂の分離・回収技術の高度化・低コスト化が不可欠であり、技術開発の加速化が必要とされているところである。

CO₂回収型石炭ガス化複合発電（IGCC+CCS）で用いる二酸化炭素分離膜モジュールの実用化を推進する目的で、膜素材会社（㈱クラレ）、膜モジュール会社（日東電工㈱）、エンジニアリング会社（新日鉄住金エンジニアリング㈱）、（公財）地球環境産業技術研究機構の一体となった技術研究組合と大学からなる研究体制を構築し、本研究開発事業に着手した。これにより、実システムで要求される耐不純物性、耐乾燥性、耐圧性、耐久性等のラボレベルでのプロセス適合性を確立し、実機型膜モジュールと膜分離システムを開発することで、平成26年度に、IGCC用実機型膜モジュールの技術を確立した。

平成27年度からは、大型化、システム化に加え開発したIGCC用実機型膜モジュールを用いた実証研究を5、6年かけて行いつつ、平成32年度末のCCS本格適用に間に合わせる。

種々の高効率火力発電所が考えられるが、中でもIGCCは低品位炭を効率よく利用することができることから低コストの発電システムが実現できる可能性がある。そのため、2020年頃から始まる石炭火力発電所の老朽化によるリプレース（トータル80GW）の際にはCCS設備を備えたIGCCが採用される可能性がある。また、アジアでは日本で確立された技術の導入要望があるため、日本での実証研究をしっかりと行って事業化が実現できるように準備したい。

また、更なるコストダウンを目指し、実証研究と合わせてCO₂分離・回収コスト1,000円/t-CO₂を実現する膜モジュール技術を確立し、実機型膜モジュールの改良と量産化検討を行なう。

同時に、開発した膜モジュールは天然ガス田からのCO₂分離・回収にも用途展開を図り、本成果を元に天然ガス田に対する適用化研究、実証研究を行い、早期の実用化につなげたい。

4-2 波及効果

本事業では、圧力を有するガス源から効率良くCO₂を分離するCO₂選択透過型分離膜モジュールの開発に取り組んでいる。本技術によりCO₂回収型石炭ガス化複合発電（IGCC+CCS）が実現できれば地球温暖化の対策ができる。

CO₂を含有するガス源としては、革新的ゼロ・エミッション石炭火力発電に加えて、天然ガス田が知られている。現在採掘が行われている天然ガス田はCO₂を約10%含むが、今後、温暖化対策の一環として、CO₂排出原単位が小さい天然ガスに燃料転換することが予想されており、その場合に現在では採算性が合わないCO₂含有量が多い劣質な天然ガス田の開拓が必須となる。ここで、CO₂含有量が多い劣質な天然ガス田の開拓の成否は、低コストでCO₂を分離・回収が可能な技術の開発に掛かっている。本事業で開発する高性能なCO₂分離膜は、低コストで効率良く天然ガスからCO₂を除去する技術であり、劣質な天然ガス田の開拓に大いに貢献することが期待できる。産油国の国策石油会社からの問い合わせもきているところである。

一方、革新的ゼロ・エミッション石炭火力発電のガス源や天然ガスほどに高圧ではないが、自圧を有してCO₂を含有するガス源は化学プラント等にも多く存在し、これらのガス源からのCO₂分離、或いは、濃度調整の方面で実用化されることも考えられる。

尚、当初想定していなかった波及効果として、閉鎖空間における二酸化炭素の除去等の期待が寄せられている。

5. 研究開発マネジメント・体制・資金・費用対効果等

5-1 研究開発計画

本事業は、公募による選定審査手続きを経て、次世代型膜モジュール技術研究組合が経済産業省からの委託契約を基に実施している。

圧力を有するガス源である IGCC 等から従来技術の 3 分の 1 程度の 1,500 円/t-CO₂ 以下で CO₂ を分離・回収する技術の確立を目的として、研究開発を推進する研究開発計画を策定した。

「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」（平成 23 年度～平成 26 年度）として研究開発を実施中である。これは、以下の 3 項目の研究開発テーマからなる。

- ① 分離膜技術の確立
- ② 実機膜モジュールの開発
- ③ 膜分離システムの開発

本事業の研究開発スケジュールを表 5-1 に示す。

表 5-1 研究開発スケジュール

年度	H23	H24	H25	H26
研究項目				
「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」				
①分離膜技術の確立				
②実機膜モジュールの開発				
③膜分離システムの開発				

「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」は平成 23 年度に開始した。

①分離膜技術の確立では、分離・回収コスト 1,500 円/t-CO₂ 以下を実現するための膜モジュール性能が発揮できるように分離膜の改良を行いつつ、分子ゲート機能 CO₂ 分離膜の実用化に向けて実システムで要求される耐不純物性、耐乾燥性、耐圧性、耐久性等の「プロセス適合性」を確立することを目的とする。合わせて、1,000 円/t-CO₂ 以下で CO₂ を分離・回収する技術を確認することを目的とする。

②実機膜モジュールの開発では、連続安定製膜に必要な要素技術を確立して、実機膜モジュール（直径 10cm、長さ 1m）に供する分離膜の安定製造を可能とすることを目的とする。

③膜分離システムの開発では、分離・回収コスト 1,500 円/t-CO₂ 以下を達成するために、膜分離システムの適用調査、プロセス検討データの取得により、開発した分離膜モジュールに最適なシステム設計を行うことを目的とする。

5. 2 研究開発実施者の実施体制・運営

5. 2. 1 研究開発実施者の実施体制・運営

「二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業」の実施体制は次の通り。

平成 23 年度より、膜素材会社 (株)クラレ)、膜モジュール会社 (日東電工(株)、エンジニアリング会社 (新日鉄住金エンジニアリング(株))、(公財) 地球環境産業技術研究機構の一体となった技術研究組合と大学からなる研究体制を構築し、分離膜技術の確立、実機膜モジュールの開発、膜分離システムの開発に関する研究開発を推進している。

また、研究開発を推進するべく、大学等の有識者からなる研究推進委員会を設置した。再委託先として大学の研究者が参加している。

研究開発実施体制を図 5-2 に示す。本事業を遂行する上での最適な研究開発体制である。

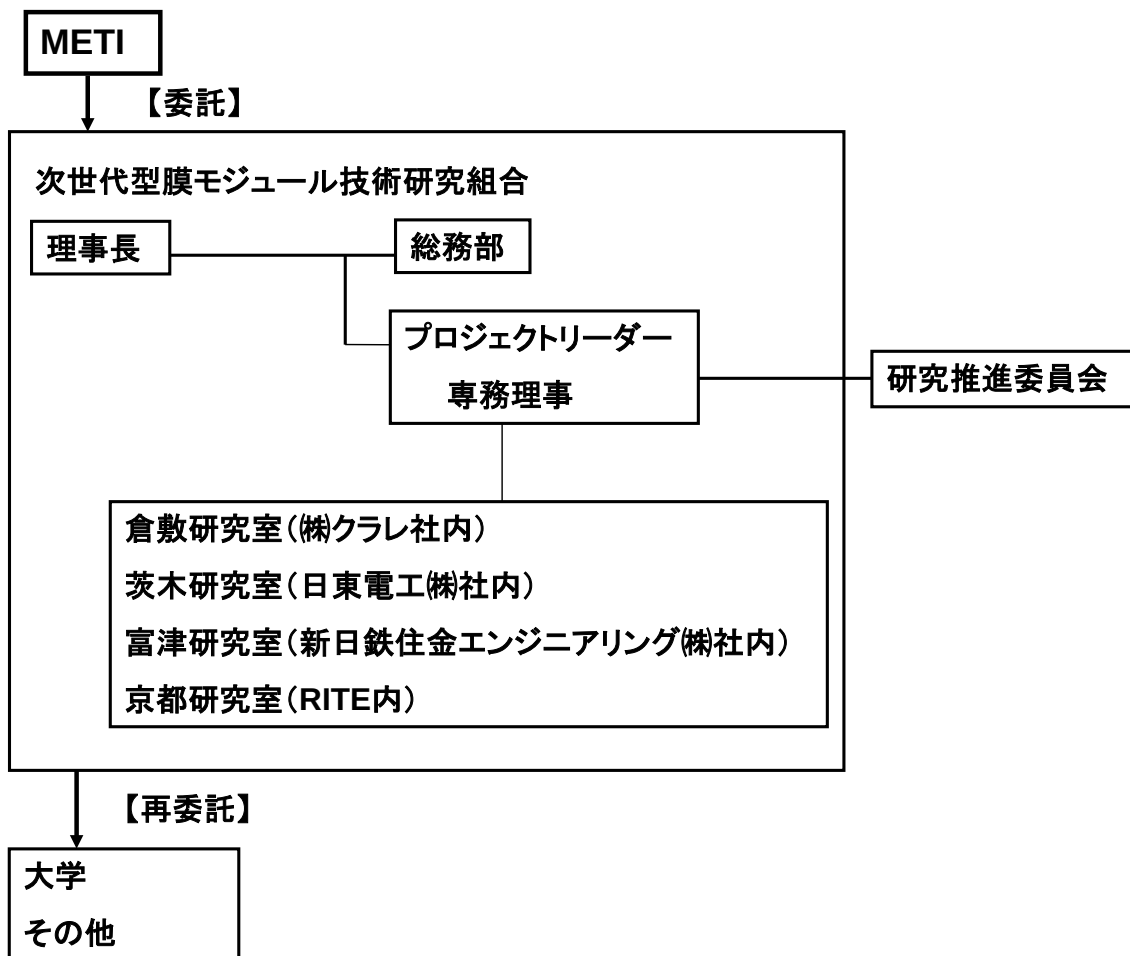


図 5-2 研究開発体制図

5. 2. 2 「国民との科学・技術対話」の推進

本事業の研究活動の内容や成果を社会・国民に対して分かりやすく説明する活動として、「国民との科学・技術対話」に積極的に取り組み、「革新的 CO₂ 膜分離技術シンポジウム」を平成 23～25 年度に行った。

【平成 23 年度】

1. 革新的 CO₂ 膜分離技術シンポジウム

副題 ; 温暖化防止に貢献する膜分離技術の最新動向 ～

2. 目 的

二酸化炭素回収・貯留 (CCS : Carbon dioxide Capture and Storage) は、温室効果ガスの大気中への排出削減効果が大きいこと等から、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つと期待されている。そのなかで、次世代型膜モジュール技術研究組合は、今後効率的な石炭ガス化発電として期待されている IGCC 等で発生する圧力を有するガスから低コストで革新的な二酸化炭素分離膜の開発(二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業)を経済産業省からの委託事業として進めている。このシンポジウムでは当組合が開発している二酸化炭素分離膜技術の最近の研究動向や海外での開発状況全般について報告し、CO₂ 分離に関心を持つ方々に最新の情報を広く伝え、官民挙げての CO₂ 削減に関する研究開発活動に理解を得る一助とする。

3. 開催内容

日 時 : 平成 23 年 11 月 4 日 (金) 13 時半～17 時

会 場 : 第一ホテル東京 5F ラ・ローズ

参加人数 : 170 名

4. プログラム

主催者挨拶 技術研究組合

理事長 河野 治

共催者挨拶 経済産業省地球環境連携・技術室

室 長 秦 茂則

講演 1 地球温暖化への対応

(財)地球環境産業技術研究機構 副理事長 茅 陽一

講演 2 膜技術基調講演「膜分離技術の現状と将来展望」化学工学会会長

技術研究組合研究開発推進委員会委員長、

工学院大学

教 授 中尾 真一

講演 3 特別招聘講演「北米の最新膜技術動向」

前北米膜学会会長 米国テキサス大学

教 授 Benny D. Freeman, PhD

講演 4 膜技術の海外調査報告

技術研究組合倉敷研究室

主 管 伊勢 智一

講演 5 次世代型膜モジュール 技術研究組合 専務理事 風間 伸吾
講演 6 膜の世界市場展開 技術研究組合茨木研究室
シニアコンサルタント 岩堀 博
閉会挨拶 技術研究組合 理事 山下 節生

5. シンポジウム報告

2011 年 11 月 4 日、次世代型膜モジュール技術研究組合（クラレ（株）、日東電工（株）、新日鉄エンジニアリング（株）、RITE）主催で、第一ホテル東京にて、革新的 CO₂ 膜分離技術シンポジウムが開催された（共催 経済産業省（METI）、後援 日本 CCS 調査株式会社（JCCS）、グローバル CCS 研究所、（社）新化学技術戦略推進協会（JACI）、協賛 日本膜学会、化学工学会（SCEJ））。政府関係者、企業、大学、研究機関から 170 名の参加があった。

次世代型膜モジュール技術研究組合は、RITE の化学研究グループが世界に先駆けて研究した分子ゲート膜を実用化するために、経済産業省の委託により設立された。

このシンポジウムでは、技術研究組合で開発している二酸化炭素分離膜技術の最近の研究動向や海外での開発状況全般について報告し、CO₂ 分離に関心を持つ方々に最新の情報を広く伝え、官民挙げての CO₂ 削減に関する研究開発活動に理解を得ることを目的とした。

シンポジウムでは、地球温暖化への対応（RITE 茅理事長）、膜分離技術の現状と将来展望（工学院大学 中尾教授）、北米の最新膜技術動向（米国テキサス大学 Freeman 教授）、膜技術の海外調査報告（技術研究組合 伊勢主管）、次世代型膜モジュール（技術研究組合 風間専務理事）、膜の世界市場展開（技術研究組合岩堀シニアコンサルタント）について講演があった。

技術研究組合メンバーによるポスターセッションも行い、関係の皆様方と議論をすることができた。



【平成 24 年度】

1. 革新的 CO₂ 膜分離技術シンポジウム

副題 ; 温暖化防止に貢献する膜分離技術の最新動向

2. 目 的

二酸化炭素回収・貯留 (CCS : Carbon dioxide Capture and Storage) は、温室効果ガスの大気中への排出削減効果が大きいこと等から、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つと期待されている。そのなかで、次世代型膜モジュール技術研究組合は、今後効率的な石炭ガス化発電として期待されている IGCC 等で発生する圧力を有するガスから低コストで革新的な二酸化炭素分離膜の開発(二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業)を経済産業省からの委託事業として進めている。

このシンポジウムでは分離膜の専門の先生方を国内外より招聘し、二酸化炭素分離膜技術の研究動向や海外での開発状況について最新状況を紹介していただいた。技術研究組合からは次世代型膜モジュール技術の最新情報を伝え、官民挙げての CO₂ 削減に関する研究開発活動に理解を得た。

3. 開催内容

日 時 : 平成 24 年 9 月 29 日 (金) 13 時～17 時

会 場 : 第一ホテル東京 5F ラ・ローズ

参加人数 : 147 名

4. プログラム

主催者挨拶 技術研究組合

理事長 河野 治

講演 1 「エネルギー・環境問題と CCS」

(公財)地球環境産業技術研究機構 所 長 山地 憲治

講演 2 膜技術基調講演「膜分離技術の現状と将来展望」

技術研究組合研究開発推進委員会委員長 広島大学 教 授 都留 稔了

講演 3 特別招聘講演「北米における二酸化炭素分離膜の研究開発について」

Director of the Research and Development Group, MTR Dr. Tim Merkel

講演 4 特別招聘講演「欧州における膜技術の研究開発について」

Group Leader and Technology Transfer Manager, ECN Dr. Jaap Vente

講演 5 「次世代型膜モジュール技術とは」

技術研究組合 専務理事 中尾 真一

閉会挨拶 技術研究組合

理 事 時任 康雄

5. シンポジウム報告

CO₂ 回収・貯留 (CCS:Carbon dioxide Capture and Storage) は、温室効果ガスの大気中への排出削減効果が大きいこと等から、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つと期待されている。その中で、次世代型膜モジュール技術研究組合

は、今後効率的な石炭ガス化発電として期待されている IGCC 等で発生する圧力を有するガス用の低コストで革新的な二酸化炭素分離膜の開発（二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業）を経済産業省からの委託事業として進めている。

今回のシンポジウムでは、基調講演として、RITE 山地研究所長より「エネルギー・環境問題と CCS」と題して、昨今の情勢から CCS への期待の高まり、日本の CCS への取り組み状況、今後日本が取るべきエネルギー政策再構築について、講演頂いた。続けて当該技術研究組合研究推進委員長・広島大学 都留教授より、膜分離技術、特に各種 CO₂ 回収プロセスへの膜技術の最新動向について解説頂くと共に、将来展望として新規材料膜の開発と応用展開について紹介頂いた。

また、海外の開発状況について、今年のシンポジウムで要望の高かった、米国 MTR 社および欧州オランダ ECN 社から CO₂ 回収技術の最新動向について講演頂いた。MTR 社 Dr. Merkel 氏からは、燃焼前・燃焼後の CO₂ 回収プロセスのための、MTR 社における膜材料及びプロセス設計、発電所における実証試験について紹介頂くとともに、今後の新規分離膜への取り組みについても言及頂いた。ECN 社 Dr. Vente 氏からは、燃焼前 CO₂ 回収のオプションとして、ECN 社における CO₂ からの水素分離技術の開発状況、特にパラジウム薄層貴金属膜の実証試験状況について紹介頂いた。

最後に、当該技術研究組合 中尾専務理事から、当組合が開発している CO₂ 分子ゲート膜ならびに膜モジュールの開発状況について報告した。

以上、これらの各講演を通じて、CO₂ 分離に関心を持たれる方々に最新の情報を伝えることにより、官民挙げての CO₂ 削減に資する研究開発活動に対して、理解を深めて頂いた。シンポジウムは 147 名が参加し、活発に質疑応答がなされるなど盛況裡に終了した。

【平成 25 年度】

1. 革新的 CO₂ 膜分離技術シンポジウム

副題 ; 温暖化防止に貢献する膜分離技術の最新動向

2. 目的

二酸化炭素回収・貯留 (CCS : Carbon dioxide Capture and Storage) は、温室効果ガスの大気中への排出削減効果が大きいこと等から、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つと期待されている。その中で、次世代型膜モジュール技術研究組合は、今後効率的な石炭ガス化発電として期待されている IGCC 等で発生する圧力を有するガスから低コストで革新的な二酸化炭素分離膜の開発(二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業)を経済産業省からの委託事業として進めている。

このシンポジウムでは分離膜の専門の先生方を招聘し、二酸化炭素分離膜技術の研究動向や海外での開発状況について最新状況を紹介していただいた。技術研究組合からは海外調査の内容と次世代型膜モジュール技術の最新情報を伝えた。官民挙げての CO₂ 削減に関する研究開発活動に理解を得る。

3. 開催内容

日 時 : 平成 26 年 2 月 5 日 (金) 13 時～17 時

会 場 : 第一ホテル東京 5F ラ・ローズ

参加人数 : 126 名

4. プログラム

主催者挨拶 技術研究組合 理事長 時任 康雄

共催者挨拶 経済産業省地球環境連携・技術室 室 長 永澤 剛

講演 1 基調講演「地球温暖化への対応」

(公財) 地球環境産業技術研究機構 理事長 茅 陽一

講演 2 膜技術基調講演「膜分離技術の現状と将来展望：拡大する応用分野」

技術研究組合研究開発推進委員会委員長 広島大学 教 授 都留 稔了

講演 3 膜技術の海外調査報告 技術研究組合 主 管 伊勢 智一

講演 4 「次世代型膜モジュール技術の進捗について」

技術研究組合 技術部長 甲斐 照彦

講演 5 特別講演「先端的低炭素化技術開発における膜および膜反応器について」

宇都宮大学 教 授 伊藤 直次

閉会挨拶 技術研究組合 専務理事 中尾 真一

5. シンポジウム報告

CO₂回収・貯留（CCS:Carbon dioxide Capture and Storage）は、温室効果ガスの大気中への排出削減効果が大きいこと等から、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つと期待されている。その中で、次世代型膜モジュール技術研究組合は、今後効率的な石炭ガス化発電として期待されている IGCC 等で発生する圧力を有するガス用の低コストで革新的な二酸化炭素分離膜の開発（二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業）を経済産業省からの委託事業として進めている。

今回のシンポジウムでは、基調講演として、RITE 茅理事長より「地球温暖化への対応」と題して、IPCC の最新動向を解説し、CO₂ 排出抑制に CCS・膜分離が鍵となる技術であることが報告された。続けて当技術研究組合研究推進委員長・広島大学 都留教授より、各国の膜技術の開発動向を紹介頂いた。技術研究組合 伊勢主管からは、当組合で行った膜関係の国際会議等の調査内容について報告が行われた。技術研究組合 甲斐技術部長は、当組合が開発している CO₂ 分子ゲート膜ならびに膜モジュールの開発状況について報告した。宇都宮大学 伊藤教授からは、水素分離膜などの動向を解説して頂いた。

以上、これらの各講演を通じて、CO₂ 分離に関心を持たれる方々に最新の情報を伝えることにより、官民挙げての CO₂ 削減に資する研究開発活動に対して、理解を深めて頂いた。シンポジウムは 126 名が参加し、活発に質疑応答がなされるなど盛況のうちに終了した。

【平成 26 年度】

1. 革新的 CO₂ 膜分離技術シンポジウム

副題；温暖化防止に貢献する膜分離技術の最新動向

2. 目 的

二酸化炭素回収・貯留（CCS：Carbon dioxide Capture and Storage）は、温室効果ガスの大気中への排出削減効果が大きいこと等から、地球温暖化対策の重要な選択肢の一つと期待されている。その中で、次世代型膜モジュール技術研究組合は、今後効率的な石炭ガス化発電として期待されている IGCC 等で発生する圧力を有するガスから低コストで分離する、革新的な二酸化炭素分離膜の開発（二酸化炭素分離膜モジュール研究開発事業）を経済産業省からの委託事業として進めている。

このシンポジウムでは分離膜の専門の先生方を招聘し、二酸化炭素分離膜技術の研究動向や海外での開発状況について最新状況を紹介していただいた。技術研究組合からは海外調査の内容と次世代型膜モジュール技術の最新情報を伝えた。官民挙げての CO₂ 削減に関する研究開発活動に理解を得る。

3. 開催内容

日 時：平成 27 年 2 月 2 日（金）13 時～17 時

会 場：第一ホテル東京 5F ラ・ローズ

参加人数：194 名

4. プログラム

主催者挨拶 技術研究組合 理事長 西岡 務

共催者挨拶 経済産業省地球環境連携室 室 長 永澤 剛

来賓挨拶 （公財）地球環境産業技術研究機構 理事長 茅 陽一

講演 1 基調講演「米国 NCCC における CCS 実証試験」

Principal Engineer Tony Wu

講演 2 基調講演「ヨーロッパおよびノルウェーにおける CO₂ 分離回収技術」

教 授 May-Britt Hägg

講演 3 膜技術基調講演「膜分離技術の現状と将来展望」

山口大学 教 授 喜多 英敏

講演 4 「膜技術の海外調査報告」 技術研究組合 主 管 藤田 明士

講演 5 「次世代型膜モジュール技術の進捗について」

技術研究組合 専務理事 中尾 真一

閉会挨拶 技術研究組合 理 事 内田 親司郎

5. シンポジウム報告

2015年2月2日、次世代型膜モジュール技術研究組合主催、経済産業省共催の表記シンポジウムが開催された。

基調講演として、まず米電力会社サザンカンパニー社 Wu プロジェクトマネージャーより、国立CO₂回収センター（NCCC）におけるCO₂分離回収技術の実証実験について、燃焼前回収、燃焼後回収における水素およびCO₂分離膜技術に重点をおいてご講演頂いた。続けてノルウェー科学技術大学（NTNU） Hägg 教授より、ノルウェー及びヨーロッパでの膜技術の最新動向、特に燃焼後排ガスからのCO₂分離回収の課題についてご講演頂いた。続いて山口大学 喜多教授より、膜技術基調講演として、膜分離技術の現状と将来展望について、特にCO₂分離膜の開発経緯から、高分子膜、ゼオライト膜から分子ふるい炭素膜開発に至るまで、新しい膜材料の設計指針等についてご解説頂いた。

技術研究組合からは、藤田主管より膜関係の国際会議等にて収集した最新技術動向を報告した。最後に、中尾専務理事より次世代型膜モジュール技術の進捗について、最新の開発情報を報告した。194名の方に参加いただき盛況のうちに終了した。

各講演を通じて、CO₂分離に関心を持たれる方々に最新情報をお伝えするとともに、活発に質疑応答がなされるなど、技術研究組合の研究活動と、CO₂膜分離技術の開発動向についてご理解を深めて頂くことができた。

以上

5-3 資金配分

年度ごとの資金配分を以下の表 5-2 に示す。

平成 23 年度、平成 24 年度は、分離膜の改良と膜モジュールの開発における基礎研究に注力した。平成 25 年度、平成 26 年度は、プロセス適合性付与のための分離膜の改良と性能評価、実用化に向けた膜モジュール開発、膜分離システムの検討に注力した。

表 5-2 資金年度配分

単位：百万円						
	年度	H23FY	H24FY	H25FY	H26FY	合計
二酸化炭素分離膜 モジュール研究開発	分離膜技術の確立	146	154	142	243	685
	実機膜モジュールの開発	122	148	76	71	417
	膜分離システムの開発	66	38	55	86	245
合計		334	340	273	400	1347

5-4 費用対効果

本事業の効率性を判断するに当たっては、事業を実施することによって得られる CO₂ の削減量のみならず、事業による市場創出等の経済効果をも考慮することが必要である。他方で、これら効果については、今後の金融・税制優遇措置や京都メカニズムの適用によって大きく変わる可能性があり、現段階では定量的評価は困難である。なお、I E A「エネルギー技術展望 2012」等にも示されているとおりに CO₂ 排出削減量を CCS の導入によって実現することとなれば、CCS 市場は大規模なものとなることが想定される。

本事業は、二酸化炭素回収・貯留（CCS）の実用化を目的とし、そのために総コストの 6 割以上を占める分離・回収コストを低減する技術を開発するものである。

本事業の二酸化炭素回収技術を実用化し、発電所等の大規模発生源からの CO₂ 分離に本技術を実用化することで、CO₂ の分離に要するコストを従来の約 3 分の 1 の 1,500 円/t-CO₂ に削減する。

温暖化対策としての CO₂ 貯留は、それ単独では経済的価値を産み出しにくい技術であるが、これらの事業成果により、CO₂ 貯留の経済的障害を緩和することができるようになり、CO₂ 貯留の実用化に向けて着実に前進することができるものと考えられる。

我が国の帯水層への CO₂ 貯留可能量は、カテゴリーA の基礎試錘データがあるもので約 52 億トン程度、全体では 1,461 億トンと見込まれている。また、カテゴリーA 帯水層への CO₂ 貯留に関しては、他の温暖化対策オプションに比べて経済的に有利であるとのモデル評価結果がある。

現状で約 4,200 円/t-CO₂ の分離・回収技術が 1,500 円/t-CO₂ になれば、トン CO₂ あたり 2,700 円の便益があり、カテゴリーA 帯水層可能量約 52 億トンの CO₂ 貯留に適用した場合に、14 兆 400 億円の便益が得られることになる。本事業の効果により CO₂ 貯留の実現性が増すばかりでなく、カテゴリーA に相当する CO₂ を処理した場合に限っても、CO₂ 処理費用を数十兆円低減する効果は莫大なものであり、本事業は研究開発費を大きく上回る十分な費用対効果を有するものと判断される。

5-5 変化への対応

本事業計画当初と比較して、経済環境の変化や我が国のエネルギー構造の変化が考えられるが、今後とも、化石燃料消費による CO₂ の排出は予想されるため、化石燃料の安定的な使用のためには CCS の早期実用化が不可欠である。

これに対応して、二酸化炭素分離膜モジュールの早期実用化を見据え、膜素材メーカー（㈱クラレ）、膜モジュールメーカー（日東電工㈱）、エンジニアリング会社（新日鉄住金エンジニアリング㈱）、（公財）地球環境産業技術研究機構が参加する技術研究組合と大学からなる研究開発体制を構築している。

CCSに係る技術開発は世界中で行われているが、分離・回収コスト削減は共通の課題となっており、この分野に膜技術を適用する研究は加速されてきている。

このため、国内外の技術動向を注視しており、国内外における学協会情報収集等を積極的に行っている。また、同時に「国民との対話」の中では海外招聘者より二酸化炭素分離膜技術の研究動向や海外での開発状況について最新状況を紹介していただいているところである。

これらのことにより、常に競合技術との比較を行い、競合技術に勝てる二酸化炭素分離膜モジュールの実用化研究を推進している。

今回、国内外の技術動向を基にして競合技術に勝てる二酸化炭素分離膜モジュールとして膜システム側でプロセス検討した結果、当初考えていた 2 段プロセスでは電力エネルギー的負荷を必要とし、電気代の変動が分離・回収コストに大きな影響を及ぼすことが分かった。そこで、電気代を掛けない 1 段プロセスで 1,500 円/t-CO₂ を実現する膜システムを検討し、新たに単膜の要求性能を見直した。

6. 中間評価結果

平成 24 年度 CO₂ 固定化・有効利用分野評価検討会において、中間評価を受け、「評価小委員会からのコメント」に対して、下記の対応状況である。また、その概要を表 6 にまとめた。

表 6 コメント及びコメントに対する対応状況

コメント	対応状況
① 耐プロセス適合性の検討を進める上で、燃焼プロセス側からの制約条件をより明確にした研究開発が必要である。	① ご指摘のとおり、燃焼プロセス側からの制約条件を調査することは重要であり、現在、制約条件をより明確にするための調査を行っているところ。今後その制約条件に基づいた実験により、耐プロセス適合性の検討を行うこととしている。
② 今後は技術開発だけではなく、実用化に向けた事業展開についても検討することが望まれる。	② 本事業は実用化を見据えて技術研究組合から成る研究開発体制を構築しており、今後実用化に向けた事業展開についても検討して参りたい。
③ 実用化は国内に限定するのではなく、EORなどで期待の大きい海外にも展開していくことが、地球全体のCO ₂ を削減するうえで重要である。今後、実用化にあたっては、長い年月の研究が必要となるが、随時海外プロジェクトへの参加による売り上げ貢献を期待したい。	③ ご指摘を踏まえ、今後実用化に当たっては、当該プロジェクトの成果をもとに、海外プロジェクトへの参加についても検討して参りたい。
④ 優れた研究でありこの方向で進めて欲しいが、研究の途中でも随時実用化を試みて貰いたい。	④ 研究開発の進展と本技術を適用できる用途及びその適用先条件を検討し、研究の途中でも随時実用化を検討して参りたい。

① IGCC 火力発電所のガスを使用して曝露試験を行いガスに対する耐性、含まれる微粒子に対する耐性を確認する予定。一番影響の大きいと考えられる硫化水素ガスについては部材曝露や膜素材曝露も行い耐性付与のためのメカニズムを検討を予定している。

② 大手重工にヒヤリングを行い事業展開について確認した。IGCC について海外

からの引き合いが多くあり、日本で確立した技術を導入したいとの意向。良いものができれば採用の可能性はあるが、そのためには実証研究が必要とのことであった。膜法の敷地面積が少なくできるところは魅力的とのこと。

- ③ 海外プロジェクトへの参加の前に日本での実証研究が必要と判断している。
- ④ 高圧用途ではメタンガス田から随伴する炭酸ガスの除去、低圧用とでは閉鎖空間中の炭酸ガス除去などが考えられるので、検討を進めたい。