

スターリングクーラーシステムによる二酸化炭素の冷凍回収

生命環境科学研究科 生命産業科学専攻

氏名：宋春風（学籍番号：201035009）

論文概要

温室効果ガスによって引き起こされる世界的な気候変動が懸念されている。温室効果ガスの中で、大気中に占める割合が高い二酸化炭素は温室効果の6割に寄与しているとされる。風力や太陽光、バイオマスなど新しい再生可能エネルギーが開発されているものの、世界は今後10年間は化石燃料に依存せざるを得ないであろう。よって二酸化炭素の回収は温室効果ガスの制御に極めて有効かつ世界的な優先事項であることは明らかである。IPCCにより二酸化炭素の回収・貯留（CCS）が温室効果ガス緩和の持続的技術として提唱されている。近年、多くの研究者らは二酸化炭素の回収効率向上と回収プロセスのコスト削減に努めてきた。現在、二酸化炭素の回収技術として吸収・吸着、冷凍、膜分離といった物理化学的方法が知られている。これらの技術の中で化学溶剤による吸収法が最も良いとされている。しかし本法は高価であり、吸収後の溶液から二酸化炭素を分離するのが困難であり、その適用が限られている。

そこで本研究では、効率的で低コストなスターリングクーラーを活用したシステムを構築し、二酸化炭素の冷凍回収特性を実験的に明らかにした。回収プロセスの概略は以下の通り：初めに供試ガスは二酸化炭素の昇華点以上の温度に達するまで前冷凍処が行われる。主冷凍塔において、そのガス流は二相の混合物に分離される。固体状の二酸化炭素（ドライアイス）はSC-2における熱交換部上で氷結し、回転式羽根によりかきとられる。ドライアイスはSC-3によって保冷の可能な温度にまで冷却された貯蔵タンクに落下する。残留ガスはガス出口を通じ大気中に放出される。本実験装置について、模擬燃焼ガスを用いたSC冷凍分離実験装置の性能特性を検討した。実験原料ガスとして、5% H_2O 、13% CO_2 、82% N_2 を供試した。最適ガス流量は5 L/minであり、最適SC-1温度は $-30^{\circ}C$ であり、最適SC-2温度は $-120^{\circ}C$ であり、最適SC-3温度は $-120^{\circ}C$ であり、最適予冷凍時間は240minであり、その時の二酸化炭素回収率は95%であった。この条件冷凍分離が、最も低いエネルギー消費（0.55 MJ/kg- CO_2 ）で行われると考えられる。

まず、本研究の背景を検討された（第1章）。現在、重要な二酸化炭素排出な工業を説明された。なお、よく使用しているの二酸化炭素の回収技術として吸収・吸着、冷凍、膜分離といった物理化学的方法を紹介した。さらに、これらの技術はまだあるの問題（例えば環境汚染とコストが高いこと）も検討された。次に、スターリングクーラー（SCs）より構成される新しい二酸化炭素の冷凍回収システムの概要を第2章に紹介した。SC冷凍分離装置の機構および二酸化炭素回収プロセスを説明された。なお、スターリングクーラーの特徴（第3章）と重要なパラメタ（温度、流量、予冷凍時間、真空度）を検討をした（第4章）。第3章にスターリングクーラー（SC）の利点を紹介された：1)冷凍回収プロセス中化学溶剤を使用しないことが示された。2)冷凍速度が速いことが示された。3)装置が小型と移動

することが容易。4) 普通の冷凍機より効率が高いことがある。SC の冷却原理を分析し、パラメタがエネルギー消費および二酸化炭素回収率に与える影響を検討された。また、二酸化炭素固体化のプロセス(第5章)とシステムのエネルギー需要量(第6章)をモデルに分析した。第5章中、冷凍回収のドライアイスの密度および厚さ変化特徴を分析された。さらに、第6章にシステム中の予冷凍塔、主冷凍塔と貯蔵塔のエネルギー消費量をシミュレーションした。最後に、本研究の主な結論と将来の二酸化炭素回収技術をまとめされた(第7章)。開発したシステムからの研究成果を総括された。なお、次の研究中心および未来の二酸化炭素の回収技術を展望された。

本システムについて、化学的吸収あるいは膜分離と比較して、スターリングクーラーを用いた冷凍技術は以下のような利点を有することが示された:1) 燃焼ガス中の水および二酸化炭素を同時に分離回収の可能性がある。2) 回収するの固形状二酸化炭素は、食品加工や農業生産に利用ことをできる。3) 回収するの二酸化炭素(ドライアイス)の純度99%以上ことがある。4) エネルギー消費量 0.55MJ/kg-CO_2 で最大95%の二酸化炭素を回収することを示した。以上の研究結果により、スターリングクーラーシステムによる燃焼ガス中95%の二酸化炭素の冷凍回収され、その分離したの二酸化炭素が 0.55MJ/kg-CO_2 のエネルギーを消費し、農林生産を利用は有望であることが示唆された。

A Novel Cryogenic CO₂ Capture Technology Based on Free Piston Stirling Coolers (FPSCs)

(スターリングクーラーシステムによる二酸化炭素の冷凍回収)

Name : Chunfeng SONG (201035009)

Bioindustrial Sciences, Graduate School of Life and Environmental Sciences

Abstract

Climate change has been one critical issue of great concern in the worldwide, and is being caused by greenhouse gases. Among the greenhouse gases, CO₂ makes up a high proportion in respect of its amount present in the atmosphere, contributing 60% of global warming effects. Although new renewable resources of energy production have been exploited (such as wind, solar, biomass and fusion energy), the world will remain largely dependent on fossil fuels for the next decades. Thus, it is clear that the capture CO₂ is significant for greenhouse effect control and it is a serious global priority. CO₂ capture and storage (CCS) has been proposed as a sustainable technology of greenhouse gas mitigation by the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). In recent years, the focus of most of the researchers fastens on improving of CO₂ capture efficiency and decreasing the capital of capture process. Nowadays, the

technologies of CO₂ capture mainly contain chemical and physical methods, including absorption, adsorption, cryogenics and membranes. Among these technologies, chemical solvents absorption is the uppermost method. Nevertheless it is expensive and difficult to separate CO₂ from the solution after absorption, and that is its biggest bottleneck in application. Therefore, it requires a novel system which can significantly reduce the energy penalty of capture.

In our research, we developed a novel cryogenic CO₂ capture system based on Stirling coolers. During the capture process, the CO₂ in the flue gas can be captured in the solid form and frosts on the surface of the cold head. Then, the captured CO₂ is separate by a motor driven scraper and gathered in the storage column. According to the results of the experiments, the system can capture 95% CO₂ from the flue gas and simultaneously the energy consumption is 0.55MJ/kg CO₂.

The thesis is organized as follows: the background of our research is introduced in Chapter 1. The dominant CO₂ emission sources are summarized in this chapter. Meanwhile, the main CO₂ capture techniques (such as absorption, adsorption, membrane and cryogenic) is listed. The detailed cryogenic capture process is described in Chapter 2. In this part, the structure of the developed system is introduced. The property of Stirling cooler is investigated in Chapter 3. Compared with the common refrigerators, Stirling cooler has several advantages: 1) The regenerant is environmental friendly. 2) The rate of refrigeration is higher. 3) The size of Stirling cooler is small and thus convenient to move. 4) The efficiency of Stirling cooler is higher. The operating principle of Stirling cooler is theoretically analyzed. The performance of the system is evaluated in Chapter 4. The influence of the key parameters on the capture performance is investigated in this part. The CO₂ frost process is simulated in Chapter 5. The variation of the density and thickness of the captured CO₂ (namely dry ice) is studied. The energy analysis of the system is carried out in Chapter 6. The detailed energy requirement of the pre-freezing, main freezing and storage tower is simulated. Finally, the main conclusion of the thesis and the outlook of CO₂ capture technology are summarized in Chapter 7. The future development of the cryogenic CO₂ capture method and other technologies is prospected.

From the results of the research, the advantages of the developed system can be summarized as follows: 1) The moisture and CO₂ can be separated from the flue gas simultaneously. 2) The captured CO₂ can be utilized in the food engineering and agricultural production. 3) The purity of the captured CO₂ can be achieved over 99.9%. 4) The CO₂ recovery of the cryogenic process is 95% and the energy consumption is 0.55 MJ/kg CO₂. Based on the conclusion of the thesis, it can be concluded that the exploited cryogenic CO₂ capture system can be effectively used on CO₂ recovery from

the large point sources and reuse it on the agriculture production.