

火力発電プラントからのCO₂回収技術の開発

Development of CO₂ Recovery Technology for Thermal Power Plant

原動機事業本部 堀岡 竜 治*¹

技術本部 安武 昭 典*² 朝 長 成 之*³

長崎造船所 高 月 誠 治*⁴

当社では地球温暖化の要因とされているCO₂の排出抑制策の一つとして、火力発電プラント排ガスからのCO₂回収技術の開発に取り組んでいる。火力発電プラントのCO₂排出量削減では、CO₂排出原単位の小さい天然ガスへの燃料転換も有効であるが、可採埋蔵量を考えると今後も石炭・石油の利用を考えざるを得ず、中でも石炭は最も可採埋蔵量が多い。そこで、当社は石炭だき火力発電プラントへの適用が有望な、物理吸着法によるCO₂回収技術の開発に取り組んでいる。

We have been developing a technology of CO₂ recovery from thermal power plants' emission. CO₂ is one of greenhouse gases, and our technology is concerning CO₂ depression, which could stop global-warming in the future. In order to decrease CO₂ emission, it is an effective way to use natural gas. On the other hand, from the point of view of resource reserves, coal and oil have to be used as fuel of thermal power plants. In such a resource situation, we are now developing the CO₂ recovery technology by physical adsorption method, which is expected to be applied for coal fired thermal power plants.

1. ま え が き

電気事業者の排出するCO₂は日本の総CO₂排出量の約1/4を占め、地球温暖化防止京都会議(COP-3)にて議定された国別CO₂排出量削減目標の達成のためには、何らかの対策を求められる可能性がある。しかし、日本では火力発電プラントの熱効率の向上が十分進んでおり、他国のように熱効率の向上による排出量削減が難しい。このような状況から、既設及び新設火力発電プラントからのCO₂の回収・処分技術の早期実用化が期待されている。

2. 物理吸着法によるCO₂回収

物理吸着法の原理は、CO₂を高圧・低温で吸着し、低圧・高温で脱着する吸着剤を用いて、圧カスイング及び温度スイングにより排ガスからCO₂を分離・濃縮し回収するものである。

吸着剤の特性を図1に示す。

当社では、圧カスイングだけを利用するPSA法(Pressure Swing Adsorption)と、圧カスイングに加えて温度スイングも利用するPTSA法(Pressure and Temperature Swing Adsorption)を開発している。

PTSA法は脱着時に高温化することにより、CO₂の回収を増進させることが特徴である。

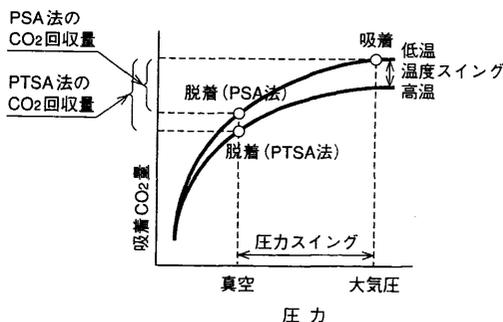


図1 吸着剤の特性
Characteristics of adsorbent

3. PSA 法

3.1 システムフロー

PSA法のシステムフローを図2に示す。

まず除湿塔にて排ガス中の水分を除去し、次に2段階のCO₂吸着塔にてCO₂を分離・濃縮し、回収する。本システムにてCO₂回収率90%、回収CO₂濃度99%を達成している。

3.2 開発状況

当社は平成元年から東北電力(株)と共同でPSA法による火力発電プラントからのCO₂分離・回収技術の開発を実施している。

開発は石炭だきボイラ排ガスを用いて小規模試験及びパイロット試験にて進めてきた。ここでは主にパイロット試験について紹介する。

3.2.1 CO₂吸着剤の選定

CO₂吸着剤としてNaX型ゼオライト、CaX型ゼオライト、BaX型ゼオライトについて、図3に示す10g級小型コラム試験装置を用いて、CO₂の吸着容量、選択性を評価し、PSA法に適したCO₂吸着剤としてNaX型ゼオライトを選定した⁽¹⁾。

3.2.2 パイロット試験

(1) 試験装置

処理排ガス量2m³N/hの小規模試験で得られたデータを基に処理排ガス量1700m³N/hのパイロットプラントを設計し、東

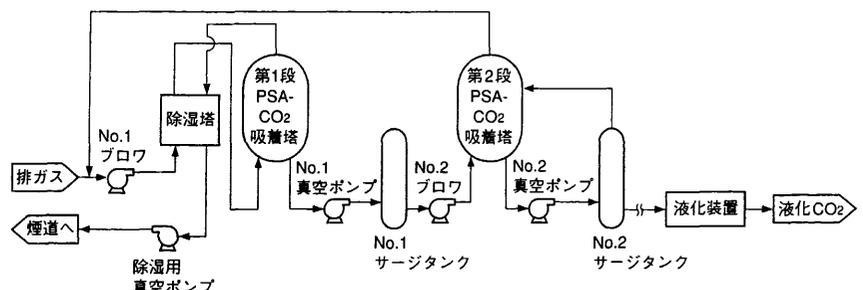


図2 PSA法のシステムフロー
Schematic flow diagram of pilot plant of PSA-CO₂

*1 原動機技術センター新製品開発部技術開発課

*2 長崎研究所化学研究室主務

*3 長崎研究所化学研究室

*4 火力プラント設計部新技術課

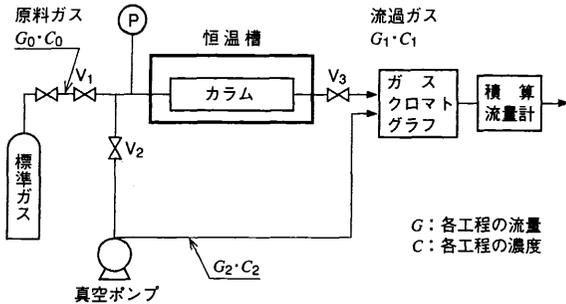


図3 小型カラム試験のシステムフロー
Schematic flow diagram of micro column test equipment of CO₂ adsorbent

表1 PSA法のパイロットプラントの仕様
Specification of pilot plant for PSA-CO₂
(a) PSA-CO₂装置 (b) CO₂液化装置

(a) PSA-CO ₂ 装置		(b) CO ₂ 液化装置	
CO ₂ 分離方式	3塔式-2段PSA	液化CO ₂ 量	125 kg/h
処理ガス量	1700 m ³ N/h	液体CO ₂ 圧力	19 ata
CO ₂ 回収率	90%	液体CO ₂ 温度	-25°C
CO ₂ 回収量	400 kg/h	液体CO ₂ タンク	5 t
回収CO ₂ 濃度	99%	CO ₂ 濃度	99.9%
吸着塔温度	40~60°C		
吸着圧力	1.1 ata		
再生圧力	0.1 ata		

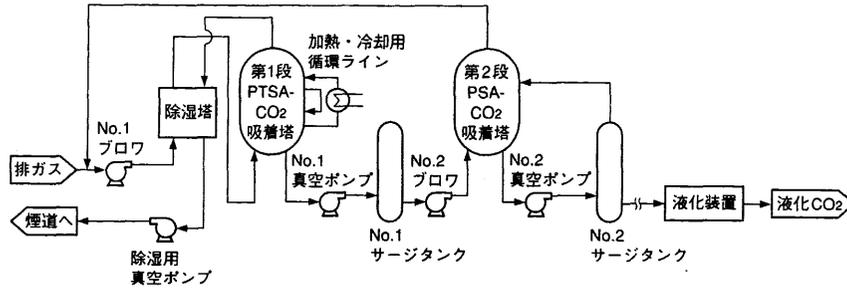


図4 PTSA法のシステムフロー
Schematic flow diagram of pilot plant of PTSA-CO₂

北電力(株)仙台火力発電所構内に設置、平成3年11月より試験を開始した。本プラントは3号機(石炭だき、出力175 MW)のボイラ排ガスの一部を取込み、CO₂の分離・回収を行うもので、回収CO₂ガスの約1/3を液化する設備も備えている。ボイラ排ガスは脱硫装置を出た後の煙突直前の煙道から取込まれ、CO₂を除去された排ガスは再び煙道に戻される。パイロットプラントの仕様を表1に示す。本プラントは水分や不純物を取除くための除湿塔、CO₂を粗濃縮する第1段PSA-CO₂吸着塔、高濃度CO₂を得る第2段PSA-CO₂吸着塔から成っており、CO₂吸着剤はNaX型ゼオライトである。

(2) 試験結果

本試験ではPSA法のCO₂分離・回収性能(CO₂回収率、回収CO₂濃度)、1m³NのCO₂を分離・回収・液化するのに必要な動力(動力原単位)、排ガス中の不純物が装置に及ぼす影響、ボイラの負荷変動に対する運転の追従性などを評価した。

中でも最も重要な分離・回収の動力原単位について、試験結果から、ボイラ排ガスのCO₂濃度に大きな影響を受けることが分かった。すなわち、ボイラ排ガスのCO₂濃度が高い場合は、動力原単位は低く抑えられ、CO₂濃度が低い場合は、動力原単位は高くなった。これにより、排ガスのCO₂濃度の高い石炭だきボイラにPSA法が適することが分かった。また、更に動力原単位を低減するには、吸着塔内の圧力損失低減が必要であるとの知見が得られ、現在、圧力損失の低減効果が大きい、ハニカム型吸着剤について研究を進めている。

4. PTSA法

4.1 システムフロー

PTSA法のシステムフローを図4に示す。

前述のPSA法の第1段PSA-CO₂吸着塔に温度スイングを導入したシステムであり、本システムにてCO₂回収率90%、回収CO₂濃度99%を達成している。

4.2 開発状況

当社は平成2年から東京電力(株)と共同で、PTSA法による火力発電プラントからのCO₂分離・回収技術の開発を実施している。

開発はCOMだきボイラ排ガスを用いて小規模試験及びパイロット試験にて進めてきた。ここでは、主にパイロット試験について紹介する。

4.2.1 CO₂吸着剤の選定

3.2.1項で述べた評価にて、PTSA法に適したCO₂吸着剤としてCaX型ゼオライトを選定した⁽⁴⁾。

4.2.2 小規模試験

処理排ガス量2m³N/hのPTSA法小規模試験装置にて模擬ボイラ排ガス(12%CO₂、残りはN₂)からのCO₂分離・回収試験を実施した。

図5に脱着温度に対する吸着性能の変化を計測した試験結果の一例を示す。試験結果から、50~100°Cの比較的低い温度範囲で脱着温度の影響が大きいことが判明した。これにより、PTSA法の温度スイングに必要な熱量を火力発電プラント内の排熱から充当できることが分かった。

4.2.3 パイロット試験

(1) 試験装置

小規模試験で得たデータを基に処理排ガス量1000m³N/hのパイロットプラントを設計し、東京電力(株)横須賀火力発電所の構内に設置、平成3年12月より試験を開始した。本プラントは1・2号機(COMだき、出力265MW×2)のボイラ排ガスの一部を取込み、CO₂の分離・回収を行うものである。ボイラ排ガスは脱硫装置を出た後の煙突直前の煙道から取込まれ、CO₂を除去された排ガスは再び煙道に戻される。

パイロットプラントの仕様を表2に示す。

本プラントは、水分を取除くための除湿塔、CO₂を粗濃縮する第1段PTSA-CO₂吸着塔、高濃度CO₂を得る第2段PSA-

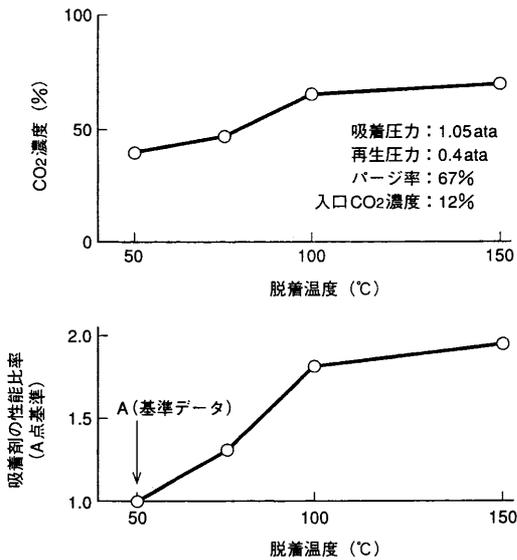


図5 PTSA法の小規模試験結果の一例 脱着温度が高いほど吸着性能が向上する。50~100°Cの温度範囲で影響が大きい。
A result of bench scale plant test of PTSA-CO₂

表2 PTSA法のパイロットプラントの仕様
Specification of pilot plant for PTSA-CO₂

CO ₂ 分離方式	4塔式-2段PTSA (第2段はPSA)
処理ガス量	1000 m ³ N/h
CO ₂ 回収率	90%
CO ₂ 回収量	190 kg/h
回収CO ₂ 濃度	99%
吸着塔温度	40~60°C
吸着圧力	1.1 ata
再生圧力	0.1 ata

CO₂吸着塔から成っており、CO₂吸着剤はCaX型ゼオライトである。

(2) 試験結果

本試験ではPTSA法のCO₂分離・回収性能(CO₂回収率, 回収CO₂濃度), 分離・回収の動力原単位などを評価した。

試験結果から分離・回収の動力原単位については, PSA法同様ボイラ排ガスのCO₂濃度に大きな影響を受けることが分かった。また, 排ガスのCO₂濃度が同じ場合, 温度スイングに必要な熱量がすべて, 火力発電プラント内の排熱で賄えるならば, PTSA法はPSA法に比べて分離・回収の動力原単位を低減できることが分かった⁽²⁾。更に動力原単位を低減するため, PTSA法においても吸着塔内の圧力損失低減効果大きい, ハニカム型吸着剤について研究を進めている⁽³⁾。

図6にパイロットプラントの2000時間連続運転試験の結果を示す。連続運転試験中に行った循環運転及び条件変化試験の期間を除き, 性能は一定しておりシステムの安定性が示された⁽⁴⁾。

5. PSA法と深冷法のハイブリッドシステム

PSA法では火力発電プラントの排ガスのように, CO₂濃度が精々10数%の場合, 1段のPSA-CO₂吸着塔でCO₂濃度99%以上に濃縮するのは不可能である。一方, 深冷法ではCO₂濃度を極め

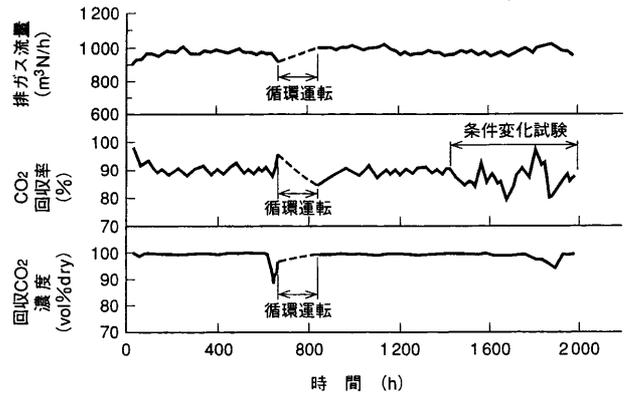


図6 PTSA法のパイロットプラントの2000時間連続運転試験結果 循環運転及び条件変化試験の期間を除き性能は一定している。
Result of PTSA-CO₂ 2000 h continuous operation test at pilot plant

て高くでき, 直接液化CO₂として取出せる。そこで, 本研究ではPSA法でCO₂を粗濃縮した後, 深冷法で高濃度液化CO₂を得るシステムを検討した。

5.1 システムフロー

PSA法と深冷法のハイブリッドシステムのシステムフローを, 図7に示す。

1段のPSA-CO₂吸着塔にて粗濃縮したCO₂を, 深冷法の液化装置に導入し, CO₂を液体で分離・回収する。液化工程の不凝縮ガスに含まれるCO₂はその高圧を利用して高圧PSA-CO₂吸着塔にて高圧吸着→大気圧脱着にて回収し, 液化装置入口に還流する。

5.2 開発状況

当社は平成2年から中部電力(株)と共同で, PSA法と深冷法のハイブリッドシステムによる火力発電プラントからのCO₂分離・回収技術の開発を実施している。

本研究では, PSA法によるCO₂分離・回収試験, 深冷法による液化試験について小規模試験及びパイロット試験にて開発を進めてきた。ここでは, 主にパイロット試験について紹介する。

5.3 パイロット試験

(1) 試験装置

処理排ガス量2m³N/hの小規模試験で得られたデータを基に, 平成6年度に処理排ガス量25m³N/hのパイロットプラントを中部電力(株)電気利用技術研究所構内に設置し, 試験を開始した。

パイロットプラントの仕様を表3に示す。本プラントは灯油だきボイラ排ガスから除湿塔にて水分を除去した後, PSA-CO₂吸着塔, 液化装置にて, 液化CO₂を得る。液化装置からの不凝縮ガスは高圧PSA-CO₂吸着塔にてCO₂を回収し, 液化装置入口に還流した。

(2) 試験結果

本試験ではハイブリッドシステムのCO₂分離・回収性能(CO₂回収率, 回収CO₂濃度), 分離・回収・液化の動力原単位などを評価した。高圧PSA-CO₂吸着塔は液化不凝縮ガスの高圧を利用して吸着し, 大気圧で脱着するため, 無動力でCO₂を回収できCO₂分離・回収動力の低減につながり, その有効性が実証された。

今後さらにCO₂回収率, 回収CO₂濃度の向上を図るため, 吸着剤の多層構造化による試験を進めており, 現在鋭意運転研究中である。

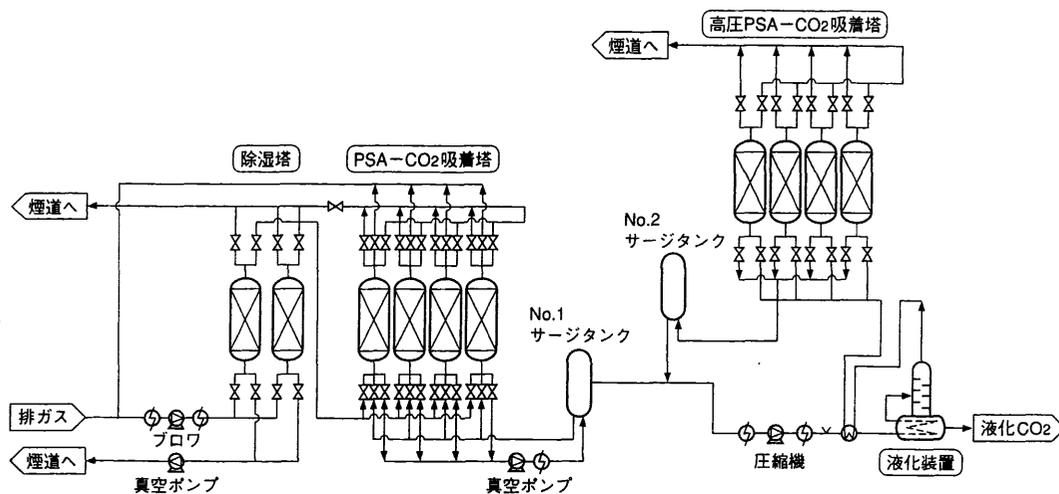


図7 PSA法と深冷法のハイブリッドシステムのシステムフロー
Schematic flow diagram of pilot plant for PTSA and liquefaction hybrid-CO₂

表3 PSA法と深冷法のハイブリッドシステムのパイロットプラントの仕様

Specification of pilot plant for PSA and liquefaction hybrid-CO₂

(a) PSA-CO ₂ 装置		(b) CO ₂ 液化装置	
CO ₂ 分離方式	4塔式-1段PSA	処理ガス量	19 m ³ N/h
処理ガス量	25 m ³ N/h	設計圧力	66.3 ata
CO ₂ 回収率	90%	設計温度	-50°C
回収CO ₂ 濃度	約50%	CO ₂ 濃度	99%
吸着塔温度	30~60°C		
吸着圧力	1.1 ata		
再生圧力	0.1 ata		

6. 技術課題と今後の展開

6.1 技術課題

これまでのパイロットプラントによる運転研究にて、物理吸着法によるCO₂回収がシステムとして成立することが実証された。

しかしながら、商用機として実用化するためには、さらにCO₂分離・回収の動力原単位を低減するとともに、システム構成機器の開発（大容量化、高効率化、コンパクト化）が必要である。

以下に実用化のための技術的課題をまとめた。

6.1.1 吸着剤の高性能化・ハニカム型吸着剤の開発

物理吸着法によるCO₂回収工程は、吸着→(加熱)→脱着・再生→昇圧→(冷却)、を1サイクルとする〔()内はPTSA法の場合〕。各工程の圧力・温度・所要時間といった運転条件はほぼ吸着剤の性能によって決定される。

したがって、CO₂分離・回収の動力原単位を低減するためには吸着剤の吸着容量及び選択性の更なる改善が必要である。

また、従来の粒状吸着剤では吸着塔での圧力損失が大きいため、その分ブロウ及び真空ポンプに動力の負担が掛かっていた。このため、現在、圧力損失の低減が期待できるハニカム型吸着剤の開発を進めている。ハニカム型吸着剤の実用化には、量産のための製造技術の確立も重要である。

6.1.2 大容量真空ポンプ・大型バルブの開発

物理吸着法ではCO₂分離・回収動力のほとんどすべてがブロウ及び真空ポンプの動力である。したがって、これら補機の大容量化・高効率化がCO₂分離・回収の動力原単位の低減に重要であ

る。特に真空ポンプは運転時の圧力変動幅が大きいため、大容量で高効率なターボ型真空ポンプを開発し、それらの多段システムにすることにより1段当りの圧力変動幅を小さくし、真空ポンプシステム全体として大容量化・高効率化を図る必要がある。

また、物理吸着法では頻繁なバルブ切替え操作による運転制御を行なう。このため、気密性・動作性・信頼性の高い大型バルブの開発が必要である。

6.1.3 システムのコンパクト化

1000 MW級火力発電プラントの排ガス量は約3百万m³N/hにもなるため、CO₂回収プラントも大規模なものになる。しかし、既設及び新設火力発電プラント共にCO₂回収プラントの設置には、建設スペースの制約が予想される。したがって、前述した吸着剤の性能向上による装置自体のコンパクト化、あるいは装置・配管の効率的配置によるシステム全体のコンパクト化を図っていくことが必要である。

6.2 今後の展開

当面は吸着剤の高性能化を中心に研究を進め、ハニカム型吸着剤により吸着性能の向上や圧力損失の低減を図り、開発の次ステップである処理排ガス量10000~100000 m³N/h級の実証機研究に展開する。

7. むすび

本研究は東北電力(株)、東京電力(株)、中部電力(株)との共同で推進している。平成7年度からは中央電力協議会の電力共同研究テーマとして取上げられており、地球環境保全の観点から、本技術の早期実用化を目指して、鋭意研究開発に取り組んでいる。

参考文献

- (1) 縄田ほか、火力発電所排ガスからのCO₂分離・回収技術、三菱重工技報 Vol.29 No.4 (1992)
- (2) 石橋ほか、火力発電所排ガスからの物理吸着法を用いるCO₂分離・回収技術の開発、化学工学会第28回秋季大会要旨集、S204 (1995)
- (3) 安武昭典、CO₂回収・固定技術、火力原子力発電技術講習会 (1998)
- (4) Ishibashi, M. et al., IEA Greenhouse Gases : Mitigations Option Conference, 929-933 (1995)