

(51)Int.Cl.

F I

B 0 1 D	7/02	(2006.01)	B 0 1 D	7/02	Z A B
B 0 1 D	53/14	(2006.01)	B 0 1 D	53/14	2 2 0
B 0 1 D	53/04	(2006.01)	B 0 1 D	53/04	
B 0 1 D	53/22	(2006.01)	B 0 1 D	53/22	
B 0 1 D	53/62	(2006.01)	B 0 1 D	53/62	

請求項の数17 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2022-518051(P2022-518051)
(86)(22)出願日 令和3年4月26日(2021.4.26)
(86)国際出願番号 PCT/JP2021/016600
(87)国際公開番号 W02021/221007
(87)国際公開日 令和3年11月4日(2021.11.4)
審査請求日 令和4年10月5日(2022.10.5)
(31)優先権主張番号 特願2020-81158(P2020-81158)
(32)優先日 令和2年5月1日(2020.5.1)
(33)優先権主張国・地域又は機関 日本国(JP)
(31)優先権主張番号 特願2020-184456(P2020-184456)
(32)優先日 令和2年11月4日(2020.11.4)
(33)優先権主張国・地域又は機関 日本国(JP)

(73)特許権者 000221834
東邦瓦斯株式会社
愛知県名古屋市熱田区桜田町19番18号
(73)特許権者 504139662
国立大学法人東海国立大学機構
愛知県名古屋市千種区不老町1番
(74)代理人 110000291
弁理士法人コスモス国際特許商標事務所
(72)発明者 梅田 良人
愛知県名古屋市熱田区桜田町19番18号
東邦瓦斯株式会社内
(72)発明者 町田 洋
愛知県名古屋市千種区不老町1番 東海国立大学機構内

早期審査対象出願

最終頁に続く

(54)【発明の名称】二酸化炭素回収装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

二酸化炭素を含有する被分離ガスから前記二酸化炭素を分離する分離装置を備える二酸化炭素回収装置において、

前記被分離ガスが供給される上流側から順に、前記分離装置と、前記分離装置において分離された二酸化炭素を昇華(固化)させる二酸化炭素昇華器と、が直列に接続されていること、

前記二酸化炭素昇華器には、冷熱を有する流体を冷媒とする冷媒回路が接続されており、前記冷媒により、前記二酸化炭素の昇華(固化)が行われること、

前記二酸化炭素の昇華(固化)が行われることにより前記二酸化炭素昇華器が減圧され、負圧となることで、前記分離装置において分離された前記二酸化炭素の吸引が行われること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項2】

請求項1に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記分離装置は、二酸化炭素を含有する被分離ガスと前記二酸化炭素を吸収する吸収液とを気液接触させて、前記吸収液に前記二酸化炭素を吸収させる吸収塔と、前記二酸化炭素を吸収した前記吸収液から、前記二酸化炭素を水蒸気とともに放散する再生塔と、から構成されること、

前記再生塔と、前記再生塔において放散された前記水蒸気を凝縮させる水蒸気凝縮器と

、前記再生塔において放散された前記二酸化炭素を昇華（固化）させる二酸化炭素昇華器と、が順次直列に接続されていること、

前記水蒸気凝縮器と、前記二酸化炭素昇華器と、には、冷熱を有する流体を冷媒とする冷媒回路が接続されており、前記冷媒により、前記水蒸気の凝縮および前記二酸化炭素の昇華（固化）が行われること、

前記水蒸気の凝縮および前記二酸化炭素の昇華（固化）が行われる際に前記水蒸気凝縮器および前記二酸化炭素昇華器が減圧され、負圧となることで、前記再生塔において放散された前記水蒸気および前記二酸化炭素の吸引が行われること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項 3】

請求項 2 に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記冷媒回路が、前記二酸化炭素昇華器、前記水蒸気凝縮器、前記吸収塔を通るように接続されており、前記二酸化炭素昇華器、前記水蒸気凝縮器、前記吸収塔の順で前記冷媒が流れること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項 4】

請求項 2 に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記再生塔に、直列に接続された前記水蒸気凝縮器と前記二酸化炭素昇華器とにより構成される二酸化炭素回収ラインが、少なくとも 2 つ、並列に接続されていること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項 5】

請求項 2 に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記再生塔に、1 台の前記水蒸気凝縮器が接続されており、前記水蒸気凝縮器に、少なくとも 2 台の前記二酸化炭素昇華器が並列に接続されていること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項 6】

請求項 2 に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記再生塔と前記水蒸気凝縮器との間に、減圧弁を備えること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項 7】

請求項 1 に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記分離装置は、二酸化炭素を吸着可能な吸着剤を収容しており、前記吸着剤が前記分離装置に供給された前記被分離ガスに含有される二酸化炭素を吸着することで、前記被分離ガスから二酸化炭素を分離すること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項 8】

請求項 1 に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記分離装置は、二酸化炭素を選択的に透過する透過膜を備えており、前記透過膜が前記分離装置に供給された前記被分離ガスに含有される二酸化炭素を透過させることで、前記被分離ガスから二酸化炭素を分離すること、

前記二酸化炭素昇華器は、前記分離装置の前記透過膜の透過側に接続されていること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【請求項 9】

請求項 7 または 8 に記載の二酸化炭素回収装置において、

前記分離装置は、前記二酸化炭素とともに水蒸気を放散すること、

前記水蒸気を凝縮させる水蒸気凝縮器を備えること、

前記被分離ガスが供給される上流側から順に、

前記分離装置と、前記水蒸気凝縮器と、前記二酸化炭素昇華器と、が直列に接続されていること、

前記冷媒回路は、前記水蒸気凝縮器と、前記二酸化炭素昇華器と、に接続されており、

10

20

30

40

50

- 前記冷媒により、前記水蒸気の凝縮および前記二酸化炭素の昇華（固化）が行われること、
- を特徴とする二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 0】
- 請求項 1 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記被分離ガスが、製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスであること、
前記二酸化炭素昇華器は、前記冷媒により摂氏マイナス 8 5 度以下に冷却されること、
二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 1】
- 請求項 1 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記被分離ガスが、発電所からの燃焼排ガスであること、
前記二酸化炭素昇華器は、前記冷媒により摂氏マイナス 9 6 度以下に冷却されること、
を特徴とする二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 2】
- 請求項 1 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記被分離ガスが大気であること、
前記二酸化炭素昇華器は、前記冷媒により摂氏マイナス 1 4 0 度以下に冷却されること、
を特徴とする二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 3】
- 請求項 1 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記二酸化炭素昇華器は、加熱媒体を備えること、
前記二酸化炭素昇華器の内部を、二酸化炭素の三重点以上の温度とされた前記加熱媒体により加熱することで、二酸化炭素を液化して回収すること、
前記加熱媒体による加熱は、液化した二酸化炭素の温度が、摂氏マイナス 5 6 . 6 度以上、摂氏マイナス 5 0 度以下となった時点、または、前記二酸化炭素昇華器の内部の圧力が 5 1 8 k P a 以上、8 0 0 k P a 以下となった時点で、停止すること、
を特徴とする二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 4】
- 請求項 1 3 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記二酸化炭素昇華器は、前記二酸化炭素昇華器の体積に対する昇華（固化）された二酸化炭素の体積の比が 0 . 1 以上、0 . 3 以下の範囲となるまで、二酸化炭素の昇華（固化）を行うこと、
を特徴とする二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 5】
- 請求項 1 3 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記二酸化炭素昇華器には、気液分離器が接続されており、前記気液分離器を介して前記二酸化炭素昇華器から二酸化炭素を回収すること、
を特徴とする二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 6】
- 請求項 1 3 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記二酸化炭素昇華器には、固液分離器が接続されており、前記固液分離器を介して前記二酸化炭素昇華器から二酸化炭素を回収すること、
を特徴とする二酸化炭素回収装置。
- 【請求項 1 7】
- 請求項 1 に記載の二酸化炭素回収装置において、
前記二酸化炭素昇華器は、昇華（固化）を行うための昇華室と、昇華（固化）された二酸化炭素であるドライアイス回収するための回収室と、からなること、
前記昇華室は、内部に、前記冷媒により冷却され、前記ドライアイスが付着する付着部を備えること、

10

20

30

40

50

前記付着部には、前記付着部を加熱可能なヒータが接続されており、前記ヒータが動作することで、前記付着部に付着したドライアイスが落下すること、

前記回収室は、前記付着部の下方に位置し、前記付着部から落下したドライアイスを受け取ること、

を特徴とする二酸化炭素回収装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、二酸化炭素を含有する被分離ガスから二酸化炭素を分離する分離装置を備える二酸化炭素回収装置に関するものである。

10

【背景技術】

【0002】

近年、気候変動問題が喫緊の課題となっており、二酸化炭素の大気放散を回避するために、燃焼排ガスなどの二酸化炭素を含有するガスから、二酸化炭素を分離、回収するための技術が求められている。また、溶接に用いる炭酸ガスや、物流に用いるドライアイス等、二酸化炭素の需要が増加している。この需要の増加に対して、供給が追い付いていない背景のもと、我が国における二酸化炭素の輸入量は年々増加する傾向にある。しかし、二酸化炭素をドライアイスとして輸入する場合には、輸送中に一部が溶けてしまうなど、ロスが大きい。このような中、発電所の燃焼排ガス等に含有される二酸化炭素を活用すべく、高純度の二酸化炭素を回収することが可能な装置が求められている。

20

【0003】

排ガス等から高純度の二酸化炭素を回収する装置としては、特許文献1に開示されるような、二酸化炭素を含有する被分離ガスと二酸化炭素を吸収する吸収液とを気液接触させて、吸収液に二酸化炭素を吸収させる吸収塔と、二酸化炭素を吸収した吸収液から、二酸化炭素を水蒸気とともに放散する再生塔と、を備える二酸化炭素回収装置が知られている。

【0004】

再生塔においては、二酸化炭素を吸収した吸収液を沸騰温度まで加熱することで、二酸化炭素と水蒸気の放散が行われる。この加熱のための消費エネルギー量を抑えるため、特許文献1では、再生塔を減圧することで、二酸化炭素を吸収した吸収液の沸騰温度を下げ、省エネルギー化を図っている。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開2005-270814号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかしながら、上記従来技術には次のような問題があった。

特許文献1に開示される二酸化炭素回収装置においては、再生塔を減圧するために、真空ポンプを用いている。この真空ポンプを動作するためには、多大な電力が必要であり、電力コストの増加や、発電のための新たな二酸化炭素の発生が懸念される。よって、電力コストの増加や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えるため、さらなる省エネルギー化を達成することが出来る二酸化炭素回収装置が求められている。

40

【0007】

本発明は、より省エネルギーに二酸化炭素を回収することが可能な二酸化炭素回収装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0008】

上記課題を解決するために、本発明の一態様における二酸化炭素回収装置は、次のよう

50

な構成を有している。

【 0 0 0 9 】

二酸化炭素を含有する被分離ガスから二酸化炭素を分離する分離装置を備える二酸化炭素回収装置において、被分離ガスが供給される上流側から順に、分離装置と、分離装置において分離された二酸化炭素を昇華（固化）させる二酸化炭素昇華器と、が直列に接続されていること、二酸化炭素昇華器には、冷熱を有する流体を冷媒とする冷媒回路が接続されており、冷媒により、二酸化炭素の昇華（固化）が行われること、二酸化炭素の昇華（固化）が行われることにより二酸化炭素昇華器が減圧され、負圧となることで、分離装置において分離された二酸化炭素の吸引が行われること、を特徴とする。

【 0 0 1 0 】

上記の二酸化炭素回収装置によれば、被分離ガスから二酸化炭素を分離し、分離した二酸化炭素を放散する分離装置と、二酸化炭素を昇華（固化）させる二酸化炭素昇華器と、が直列に接続されている。分離装置で分離された二酸化炭素は、分離装置から放散され、二酸化炭素昇華器まで流れる。二酸化炭素昇華器に達した二酸化炭素は、冷熱を有する流体を利用した冷媒により冷却され、昇華（固化）される。この二酸化炭素が昇華（固化）されて生じたドライアイス、再度昇華（気化）するなどして回収し、炭酸ガス等として活用することが出来る。

【 0 0 1 1 】

二酸化炭素が昇華（固化）される際、二酸化炭素昇華器は、減圧され、負圧となる。この負圧により、分離装置から放散された二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、分離装置から二酸化炭素昇華器までの、二酸化炭素の流れが生じ、二酸化炭素昇華器における二酸化炭素の昇華（固化）が促進されるのである。二酸化炭素の吸引は、冷熱を有する流体を利用して行われるものであるため、吸引のためのポンプ等が必要なく、省エネルギー化を達成することが出来る。そして、省エネルギー化により、電力コストの増大や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えることが出来る。

【 0 0 1 2 】

冷熱を有する流体とは、例えば、液化燃料や、液化ガスが挙げられる。液化燃料とは、例えば、液化天然ガス（LNG）、液体水素、液化メタンなどが挙げられる。都市ガスの主原料となる天然ガスは、LNGの状態では輸入され、LNG受入基地において再ガス化され、パイプラインにより出荷される。LNGの再ガス化の際には、大量の冷熱エネルギーが放出されており、この冷熱エネルギーは、未利用エネルギーとして、注目されている。よって、上記のように、二酸化炭素の吸引に液化燃料の冷熱を利用すれば、未利用エネルギーの活用という点で、環境問題に配慮した二酸化炭素回収装置とすることが出来る。なお、液化燃料としては、LNGの他、液体水素なども挙げられる。また、液化ガスとは、例えば、液化窒素や液化酸素などが挙げられる。その他、冷熱を有する流体としては、液体である必要はなく、気体、スラリー、気液混相流であっても良い。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 3 】

本発明の二酸化炭素回収装置は、上記構成を有することにより、より省エネルギーに二酸化炭素を回収することが可能となる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 4 】

【 図 1 】 第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

【 図 2 】 第 2 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

【 図 3 】 第 3 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

【 図 4 】 第 3 の実施形態の変形例に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

【 図 5 】 第 4 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

【 図 6 】 第 4 の実施形態の変形例に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

10

20

30

40

50

【図 7】二酸化炭素の状態図である。

【図 8】所定の体積比毎に、ドライアイスの質量に対する、回収可能な液化炭酸の質量割合と、気化した二酸化炭素の質量割合を示した表である。

【図 9】第 5 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

【図 10】第 6 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置の構成を概略的に表した図である。

【図 11】本実施形態に係るアミン溶液における二酸化炭素の溶解度を表すグラフである。

【図 12】従来液における二酸化炭素の溶解度を表すグラフである。

【図 13】二酸化炭素昇華器の構成を示す図である。

【図 14】二酸化炭素昇華器の構成を示す図である。

10

【図 15】被分離ガスの種類ごとに二酸化炭素の分圧値の範囲を示したグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0015】

(第 1 の実施形態)

まず、本発明の二酸化炭素回収装置の第 1 の実施形態について、図面を参照しながら詳細に説明する。

【0016】

図 1 は、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A の構成を概略的に表した図である。二酸化炭素回収装置 1 A は、図 1 に示すように、分離装置 6 0 と、水蒸気凝縮器 4 A、4 B と、二酸化炭素昇華器 5 A、5 B と、を備えている。

20

【0017】

分離装置 6 0 は、吸収塔 2 と再生塔 3 とから構成される。吸収塔 2 は、例えば向流型気液接触装置であり、内部にラシヒリングなどの充填材 2 1 が充填されている。

【0018】

また、吸収塔 2 は、充填材 2 1 よりも下部にガス導入口 2 2 を備え、ガス導入口 2 2 には、ガス供給路 L 1 1 が接続されている。ガス供給路 L 1 1 から、吸収塔 2 に、例えば、発電所や製鉄工場、セメント工場で発生する燃焼排ガス(被分離ガスの一例)が供給される。なお、被分離ガスとしては、燃焼排ガスに限定されるものではなく、大気を用いることも可能である。その他にも、バイオガスを利用することも可能であるし、浸炭炉などの熱処理炉や化学反応装置から発生する、二酸化炭素を含有するオフガスを利用することも可能である。

30

【0019】

燃焼排ガスは、二酸化炭素を約 10 ~ 20 % 含有しており、その他に窒素、酸素などを含む。なお、燃焼排ガスには硫酸化物が含有されていることが考えられるため、ガス供給路 L 1 1 上に脱硫装置を設け、硫酸化物を除去した燃焼排ガスを吸収塔 2 に供給するものとしても良い。

【0020】

また、吸収塔 2 は、充填材 2 1 よりも上部に吸収液(リーン液)を導入するための吸収液導入口 2 3 を備えている。なお、吸収液としては、アミン系水溶液や物理吸収液を用いることが可能である。アミンとしては、例えば、モノエタノールアミン(MEA)、ジエタノールアミン(DEA)、トリエタノールアミン(TEA)、ジエチルエタノールアミン(DEEA)、ジイソプロピルアミン(DIPA)、アミノエトキシエタノール(AEE)およびメチルジエタノールアミン(MDEA)が挙げられる。物理吸収液としては、シクロテトラメチレンスルホン(スルホラン)および該化合物の誘導体、脂肪族酸アミド、NMP(N-メチルピロリドン)、N-アルキル化ピロリドンおよび相応するピペリドン、メタノールおよびポリエチレングリコールのジアルキルエーテル類の混合物が挙げられる。

40

【0021】

ただし、吸収液として最も望ましいのは、2-(エチルアミノ)エタノールと、ジエチレングリコールモノエチルエーテルとを、アミン濃度が 30 % 程度となるように混合した

50

アミン溶液（以下、本実施形態に係るアミン溶液という）である。本実施形態に係るアミン溶液を用いることで、従来から知られているアミン溶液（アミン濃度が30%程度となるように混合されたMEA溶液（以下、従来液という））と比べて、吸収した二酸化炭素の再生を、より効率よく行うことが可能である。

【0022】

図11は、本実施形態に係るアミン溶液における二酸化炭素の溶解度を表すグラフであり、図12は、従来液における二酸化炭素の溶解度を表すグラフである。なお、図11、12ともに、摂氏40度の雰囲気下における溶解度を表している。

【0023】

例えば、二酸化炭素の吸収時の圧力を10kPaとし、吸収した二酸化炭素の再生時の圧力を1kPaとすれば、図11および図12に示す通り、本実施形態に係るアミン溶液の、吸収時と再生時の二酸化炭素の溶解度差D11は約0.25(mol-CO₂/mol-amine)であり、従来液の吸収時と再生時の二酸化炭素の溶解度差D12は、約0.08(mol-CO₂/mol-amine)である。この溶解度差が大きいほど、二酸化炭素の再生量が多くなるのであり、本実施形態に係るアミン溶液は、溶解度差D11が、従来液の溶解度差D12の約3倍であることから、従来液に比べて、吸収した二酸化炭素の再生を、より効率よく行うことが可能である。

10

【0024】

ガス導入口22から吸収塔2に供給された燃焼排ガスは、吸収塔2内を上昇し、吸収液導入口23から吸収塔2に導入された吸収液（リーン液）は、充填材21に向かって落下する。また、吸収塔2に供給された燃焼排ガスも、充填材21に向かって上昇してくる。そのため、吸収液（リーン液）は、充填材21の表面を落下する間に燃焼排ガスと気液接触し、燃焼排ガス中の二酸化炭素を選択的に吸収する。そして、二酸化炭素が除去された燃焼排ガス（窒素および酸素）は、吸収塔2の頂部に接続された排出流路L12から排出され、二酸化炭素を吸収した吸収液（リッチ液）は、吸収塔2の底部の排出口24から排出される。

20

【0025】

吸収塔2の排出口24には、取り出し管L13の一端が接続されており、取り出し管L13の他端は、再生塔3に接続されている。吸収塔2から取り出し管L13に排出された吸収液（リッチ液）は、熱交換器6を経て、再生塔3に移送される。

30

【0026】

再生塔3は、例えば向流型気液接触装置であり、内部にラシヒリングなどの充填材31が充填されている。

【0027】

再生塔3は、充填材31よりも上部に、取り出し管L13が接続された吸収液導入口32を備えており、吸収液導入口32から、取り出し管L13を経て移送される吸収液（リッチ液）が、に供給される。吸収液導入口32から供給された吸収液（リッチ液）は充填材31に落下する。

【0028】

そして、吸収液（リッチ液）は、落下する間に再生塔3内で、沸騰温度に達するように加熱され、二酸化炭素を水蒸気とともに放散する。吸収液（リッチ液）の加熱は、例えば、廃温熱や環境熱を利用したヒートポンプ7や、吸収塔2において吸収液（リーン液）が二酸化炭素を吸収する際の発熱を利用したヒートポンプ8によって、行われる。再生塔3内は、例えば約4kPaに減圧されているため（詳細は後述）、沸騰温度が低下される（水の沸騰温度は、約4kPaの状況下で約29度となる）。よって、吸収液（リッチ液）を加熱するための消費エネルギーを抑えることが可能となっている。

40

【0029】

二酸化炭素を放散した後の吸収液（リーン液）は、再生塔3の底部の排出口33から排出される。再生塔3から取り出し管L14に排出された吸収液（リーン液）は、熱交換器6を経て、吸収塔2に戻される。取り出し管L14は、吸収塔2の吸収液導入口23に接

50

続されているため、吸収塔 2 に戻された吸収液（リーン液）は、充填材 2 1 に向かって落下し、二酸化炭素を吸収するのに再利用される。

【 0 0 3 0 】

また、放散された二酸化炭素と水蒸気とは、再生塔 3 の頂部から第 1 移送管 L 1 5 に排出される。この排出は、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に生じる負圧により、二酸化炭素と水蒸気が吸引されることで行われるものである（二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に生じる負圧については後述する。）

【 0 0 3 1 】

第 1 移送管 L 1 5 は切替弁 1 1 によって、分岐移送管 L 1 5 1 A と、分岐移送管 L 1 5 1 B とに分岐されている。この分岐により、再生塔 3 には、直列に接続された水蒸気凝縮器 4 A と二酸化炭素昇華器 5 A とにより構成される二酸化炭素回収ライン 1 0 A と、直列に接続された水蒸気凝縮器 4 B と二酸化炭素昇華器 5 B とにより構成される二酸化炭素回収ライン 1 0 B とが、並列に接続されている。そして、切替弁 1 1 の動作により、再生塔 3 から排出される二酸化炭素と水蒸気を、二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B のどちらに流すか、選択することが可能となっている。

10

【 0 0 3 2 】

二酸化炭素回収ライン 1 0 A (1 0 B) の構成について、詳しく説明すると、再生塔 3 は、第 1 移送管 L 1 5 と分岐移送管 L 1 5 1 A (L 1 5 1 B) を介し、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と接続されている。なお、分岐移送管 L 1 5 1 A (L 1 5 1 B) は、切替弁 1 1 と、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) との間に、開閉弁 1 3 A (1 3 B) を備えている。

20

【 0 0 3 3 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) は、内部に熱交換器 4 1 A (4 1 B) を備えている。該熱交換器 4 1 A は、後述する冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を流れる冷媒により、内部の水蒸気と二酸化炭素を冷却するために用いられる。水蒸気凝縮器 4 A (4 B) は、さらに、廃温熱や環境熱を利用したヒートポンプ 4 2 A (4 2 B) や、ドレン 4 3 A (4 3 B) が接続されている。該ドレン 4 3 A (4 3 B) は、開閉弁 1 5 A (1 5 B) を有している。

【 0 0 3 4 】

また、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) は、第 2 移送管 L 1 6 A (L 1 6 B) を介して、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に接続されている。なお、第 2 移送管 L 1 6 A (L 1 6 B) は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) との間に、開閉弁 1 4 A (1 4 B) を備えている。

30

【 0 0 3 5 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は、内部に熱交換器 5 1 A (5 1 B) を備えている。該熱交換器 5 1 A (5 1 B) は、後述する冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を流れる冷媒により、内部の二酸化炭素を冷却するために用いられる。二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は、さらに、廃温熱や環境熱を利用したヒートポンプ 5 2 A (5 2 B) や、ドレン 5 3 A (5 3 B) 、取り出し管 5 4 A (5 4 B) が接続されている。ドレン 5 3 A (5 3 B) は、開閉弁 1 6 A (1 6 B) を有し、取り出し管 5 4 A (5 4 B) は、開閉弁 1 7 A (1 7 B) を備えている。

【 0 0 3 6 】

40

また、二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B のそれぞれには、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B 、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B の順に冷媒が流れるように、冷媒回路 1 2 A , 1 2 B が構成されている。さらに、冷媒回路 1 2 A , 1 2 B は、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B を通った後に合流し、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B を流れた冷媒が、さらに吸収塔 2 に流れるように構成されている。冷媒には、液化燃料（流体の一例）の再ガス化後の冷熱が用いられる。液化燃料とは、例えば、液化天然ガスや液体水素や液化メタンなどが挙げられる。また、冷媒には、液化ガスの再ガス化後の冷熱を用いることも可能である。液化ガスとは、例えば、液化窒素や液化酸素などが挙げられる。

【 0 0 3 7 】

以上の構成を有する二酸化炭素回収装置 1 における、冷媒と、水蒸気凝縮器 4 A (4 B

50

)と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の機能について、以下に説明する。

【 0 0 3 8 】

冷媒は、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を通り、まず、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の有する熱交換器 5 1 A (5 1 B) により、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内を冷却する。液化燃料として液化天然ガスを用いた場合の冷熱は、摂氏マイナス 1 6 2 度であり、液体水素を用いた場合の冷熱は、摂氏マイナス 2 5 3 度であるが、熱交換器 5 1 A (5 1 B) の温度差制御や別途作動媒体または冷媒を介することで、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、二酸化炭素の昇華 (固化) に適した温度に冷却される。例えば、被分離ガスとして製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスを用いる場合には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 8 5 度以下に冷却することが好ましい。また、被分離ガスとして発電所からの燃焼排ガスを用いる場合には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 9 6 度以下に冷却することが好ましい。さらにまた、被分離ガスとして大気を用いる場合には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 1 4 0 度以下に冷却することが好ましい。

10

【 0 0 3 9 】

被分離ガスの種類によって、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の二酸化炭素の昇華 (固化) に適した温度が異なるのは、被分離ガス中の二酸化炭素の分圧が、被分離ガスの種類によって異なるためである。ここで、図 1 5 は、製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガス (図 1 5 中の第 1 燃焼排ガスに当たる) と、発電所からの燃焼排ガス (図 1 5 中の第 2 燃焼排ガスに当たる) と、大気と、の二酸化炭素の分圧値の範囲を示すグラフである

20

【 0 0 4 0 】

例えば、製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスにおける二酸化炭素の最大の分圧値 P_{11} は約 6 0 k P a である。そして、この分圧値 P_{11} に対応する、二酸化炭素が気固平衡状態となる温度は、摂氏約マイナス 8 5 度である。よって、被分離ガスとして製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスを用いる場合に、二酸化炭素を昇華 (固化) するためには、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 8 5 度以下に冷却することが好ましい。

【 0 0 4 1 】

また例えば、発電所からの燃焼排ガスにおける二酸化炭素の最大の分圧値 P_{12} は約 2 1 k P a である。そして、この分圧値 P_{12} に対応する、二酸化炭素が気固平衡状態となる温度は、摂氏約マイナス 9 6 度である。よって、被分離ガスとして発電所からの燃焼排ガスを用いる場合に、二酸化炭素を昇華 (固化) するためには、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 9 6 度以下に冷却することが好ましい。

30

【 0 0 4 2 】

また例えば、大気における二酸化炭素の最大の分圧値 P_{13} は約 0 . 0 4 5 k P a である。そして、この分圧値 P_{13} に対応する、二酸化炭素が気固平衡状態となる温度は、摂氏約マイナス 1 4 0 度である。よって、被分離ガスとして大気を用いる場合に、二酸化炭素を昇華 (固化) するためには、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 1 4 0 度以下に冷却することが好ましい。

40

【 0 0 4 3 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度が、二酸化炭素の昇華 (固化) に適した温度に冷却されることで、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の二酸化炭素は昇華 (固化) され、ドライアイスとなる。昇華 (固化) の際に残った M E A 溶液は、開閉弁 1 6 A (1 6 B) を開弁することで、ドレン 5 3 A (5 3 B) から排出される。また、ドライアイス化された二酸化炭素を回収する際には、開閉弁 1 7 A (1 7 B) を開弁し、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) を常温に戻すことで、ドライアイスが昇華 (気化) し、取り出し管 5 4 A (5 4 B) から回収する。この際、開閉弁 1 4 A (1 4 B) , 1 6 A (1 6 B) は、閉弁状態とし、昇華 (気化) した二酸化炭素が取り出し管 5 4 A (5 4 B) 以外に流入しないようにしておく。そして、回収された二酸化炭素は、炭酸ガス等として活用される。

50

【 0 0 4 4 】

二酸化炭素を回収する際には、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B における二酸化炭素の昇華（固化）を停止させる必要がある。しかし、上述したように、切替弁 1 1 によって、再生塔 3 から排出される二酸化炭素と水蒸気を、二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B のどちらに流すか、選択することが可能であるため、一方の二酸化炭素回収ライン 1 0 A の二酸化炭素昇華器 5 A から二酸化炭素を回収する際に、他方の二酸化炭素回収ライン 1 0 B の二酸化炭素昇華器 5 B で二酸化炭素の昇華（固化）を続け続けることができる。よって、より効率良く二酸化炭素を回収することが可能である。

【 0 0 4 5 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) において、二酸化炭素の昇華（固化）が行われる際、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は減圧され、負圧となる。これにより、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) がポンプの役割を果たし、再生塔 3 において放散された水蒸気および二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、水蒸気および二酸化炭素の、二酸化炭素回収ライン 1 0 A (1 0 B) に向かう流れが生じるのである。

10

【 0 0 4 6 】

また、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) が減圧されるに伴い、直列に接続されている再生塔 3 も減圧されるため、再生塔 3 における吸収液の沸騰温度が低下される。よって、吸収液を加熱するための消費エネルギーを抑えることが可能となっている。本実施形態においては、再生塔 3 は、上述の通り約 4 K P a に減圧されている。再生塔 3 の圧力の調整は、第 1 移送管 L 1 5 上に設けられた減圧弁 9 により行われる。

20

【 0 0 4 7 】

次に、冷媒は、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の冷却を行った後、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) の有する熱交換器 4 1 A (4 1 B) により水蒸気凝縮器 4 A (4 B) 内を冷却する。冷媒は熱交換器 5 1 A (5 1 B) における熱交換により温度が上昇されていることで、摂氏約 1 度に冷却されている。

【 0 0 4 8 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) が摂氏約 1 度とされているため、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に生じた負圧によって吸引されて、再生塔 3 から排出された二酸化炭素と水蒸気は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) に流入されると、摂氏約 2 0 度に冷却される。これにより、水蒸気は凝縮されて水となる。当該水は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) の底部に貯められ、貯められた水は、開閉弁 1 5 A (1 5 B) を開弁することで、ドレン 4 3 A (4 3 B) により排出される。なお、ドレン 4 3 A (4 3 B) を再生塔 3 に接続し、再生塔 3 で再利用することとしても良い。

30

【 0 0 4 9 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) に、水蒸気とともに流入された二酸化炭素は、摂氏約 2 0 度では気体のままであるため、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に吸引にされることで、第 2 移送管 L 1 6 A (L 1 6 B) を通り、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) へ流入される。そして、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に流入した二酸化炭素は、上述したように昇華（固化）され、ドライアイスとされる。

【 0 0 5 0 】

次に、冷媒は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) 内の冷却を行った後、吸収塔 2 の冷却に利用される。吸収塔 2 を冷却する目的は、吸収液が二酸化炭素を吸収する際に発熱するため、この発熱による吸収塔 2 の温度上昇を抑制することにある。

40

【 0 0 5 1 】

以上説明したように、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A は、二酸化炭素を含有する被分離ガスから二酸化炭素を分離する分離装置 6 0 を備える二酸化炭素回収装置 1 A において、被分離ガスが供給される上流側から順に、分離装置 6 0 と、分離装置 6 0 において分離された二酸化炭素を昇華（固化）させる二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、が直列に接続されていること、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B には、冷熱を有する流体を冷媒とする冷媒回路 1 2 A , 1 2 B が接続されており、冷媒により、二酸化炭素の昇華（固化

50

）が行われること、二酸化炭素の昇華（固化）が行われる際に二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B が減圧され、負圧となることで、分離装置 6 0 において分離された二酸化炭素の吸引が行われること、を特徴とする。

【 0 0 5 2 】

上記二酸化炭素回収装置 1 A によれば、被分離ガスから二酸化炭素を分離し、分離した二酸化炭素を放散する分離装置 6 0 と、二酸化炭素を昇華（固化）させる二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、が直列に接続されている。分離装置 6 0 で分離された二酸化炭素は、分離装置 6 0 から放散され、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B まで流れる。二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に達した二酸化炭素は、冷熱を有する流体を利用した冷媒により冷却され、昇華（固化）される。この二酸化炭素が昇華（固化）されて生じたドライアイス、再度昇華（気化）するなどして回収し、炭酸ガス等として活用することが出来る。

10

【 0 0 5 3 】

二酸化炭素が昇華（固化）される際、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B は、減圧され、負圧となる。この負圧により、分離装置 6 0 から放散された二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、分離装置 6 0 から二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B までの、二酸化炭素の流れが生じ、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B における二酸化炭素の昇華（固化）が促進されるのである。二酸化炭素の吸引は、冷熱を有する流体を利用して行われるものであるため、吸引のためのポンプ等が必要なく、省エネルギー化を達成することが出来る。そして、省エネルギー化により、電力コストの増大や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えることが出来る。

20

【 0 0 5 4 】

冷熱を有する流体とは、例えば、液化燃料や、液化ガスが挙げられる。液化燃料とは、例えば、液化天然ガス（LNG）、液体水素、液化メタンなどが挙げられる。都市ガスの主原料となる天然ガスは、LNG の状態で輸入され、LNG 受入基地において再ガス化され、パイプラインにより出荷される。LNG の再ガス化の際には、大量の冷熱エネルギーが放出されており、この冷熱エネルギーは、未利用エネルギーとして、注目されている。よって、上記のように、二酸化炭素の吸引に液化燃料の冷熱を利用すれば、未利用エネルギーの活用という点で、環境問題に配慮した二酸化炭素回収装置とすることが出来る。なお、液化燃料としては、LNG の他、液体水素なども挙げられる。また、液化ガスとは、例えば、液化窒素や液化酸素などが挙げられる。その他、冷熱を有する流体としては、液体である必要はなく、気体、スラリー、気液混相流であっても良い。

30

【 0 0 5 5 】

また、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A は、分離装置 6 0 は、二酸化炭素を含有する被分離ガスと二酸化炭素を吸収する吸収液とを気液接触させて、吸収液に二酸化炭素を吸収させる吸収塔 2 と、二酸化炭素を吸収した吸収液から、二酸化炭素を水蒸気とともに放散する再生塔 3 と、から構成されること、再生塔 3 と、再生塔 3 において放散された水蒸気を凝縮させる水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と、再生塔において放散された二酸化炭素を昇華（固化）させる二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、が順次直列に接続されていること、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、には、冷熱を有する流体を冷媒とする冷媒回路 1 2 A , 1 2 B が接続されており、冷媒により、水蒸気の凝縮および二酸化炭素の昇華（固化）が行われること、水蒸気の凝縮および二酸化炭素の昇華（固化）が行われる際に水蒸気凝縮器 4 A , 4 B および二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B が減圧され、負圧となることで、再生塔 3 において放散された水蒸気および二酸化炭素の吸引が行われること、を特徴とする。

40

【 0 0 5 6 】

上記二酸化炭素回収装置 1 A によれば、再生塔 3 と、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、が順次直列に接続されているため、再生塔 3 において放散された二酸化炭素および水蒸気は、まず水蒸気凝縮器 4 A , 4 B まで流れ、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B において水蒸気のみが、冷熱を有する流体を利用した冷媒により冷却され、凝縮される。そして、二酸化炭素のみが、次の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B まで流れる。二酸

50

化炭素昇華器 5 A , 5 B に達した二酸化炭素は、冷熱を有する流体を利用した冷媒により冷却され、昇華（固化）される。この二酸化炭素が昇華（固化）されて生じたドライアイス、再度昇華（気化）するなどして回収し、炭酸ガス等として活用する。

【 0 0 5 7 】

二酸化炭素が昇華（固化）される際に水蒸気凝縮器 4 A , 4 B および二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B が減圧され、負圧となる。この負圧により、再生塔 3 において放散された水蒸気および二酸化炭素の吸引が行われるため、水蒸気については再生塔 3 から水蒸気凝縮器 4 A , 4 B までの流れが生じ、二酸化炭素については再生塔 3 から水蒸気凝縮器 4 A , 4 B を通って、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B までの流れが生じるのである。

【 0 0 5 8 】

水蒸気凝縮器 4 A , 4 B および二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B が減圧されるに伴い、直列に接続されている再生塔 3 も減圧されるため、再生塔 3 における吸収液（アミン系水溶液）の沸騰温度が低下される。よって、吸収液（アミン系水溶液）を加熱するための消費エネルギーを抑えることが可能となっている。

【 0 0 5 9 】

さらに、再生塔 3 の減圧は、冷熱を有する流体を利用して行われるものであるため、再生塔 3 を減圧するために電力が必要なく、省エネルギー化を達成することが出来る。そして、省エネルギー化により、電力コストの増大や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えることができる。

【 0 0 6 0 】

また、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A は、冷媒回路 1 2 A , 1 2 B が、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B 、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B 、吸収塔 2 を通るように接続されており、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B 、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B 、吸収塔 2 の順で冷媒が流れること、を特徴とする。

【 0 0 6 1 】

上記二酸化炭素回収装置 1 A によれば、二酸化炭素の昇華（固化）に利用した、冷熱を有する流体による冷媒を、さらに水蒸気の凝縮に利用でき、その後さらに吸収塔 2 の冷却に利用することが可能である。吸収塔 2 を冷却する目的は、吸収液（アミン系水溶液）が二酸化炭素を吸収する際に発熱するため、この発熱による吸収塔 2 の温度上昇を抑制することにある。

【 0 0 6 2 】

また、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A は、再生塔 3 に、直列に接続された水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B とにより構成される二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B が、少なくとも 2 つ、並列に接続されていること、を特徴とする。よって、より効率良く二酸化炭素を回収することが可能である。

【 0 0 6 3 】

二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B においては、昇華（固化）された二酸化炭素であるドライアイス、再度ガス化するなどして回収する作業が必要となるため、回収の際には、二酸化炭素の昇華（固化）を停止させる必要がある。そこで、再生塔 3 に、直列に接続された水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B とにより構成される二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B が、少なくとも 2 つ、並列に接続されていることで、一方の二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B の二酸化炭素昇華器からドライアイス、再度昇華（気化）するなどして回収する際に、他方の二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B を稼働させ続けることができるため、より効率良く二酸化炭素を回収することが可能である。

【 0 0 6 4 】

また、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A は、再生塔 3 と水蒸気凝縮器 4 A , 4 B との間に、減圧弁 9 を備える。二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B を冷却し、圧力を低下させるほど、より急速に二酸化炭素のドライアイス化を進めることができ、また、放散された二酸化炭素および水蒸気を吸引する力が増大する。しかし、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B の圧力が低下されるほど、再生塔 3 の圧力も低下されるため、再生塔 3 内の圧力が下

10

20

30

40

50

がり過ぎると、再生塔 3 内の吸収液（アミン系水溶液）が、液体と固体の共存状態となり得るなど、却って二酸化炭素の放散する効率が低下するおそれがある。そこで、再生塔 3 と水蒸気凝縮器 4 A , 4 B との間に減圧弁を設け、減圧弁 9 により再生塔 3 の圧力を調整可能とすることが望ましい。

【 0 0 6 5 】

また、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A は、被分離ガスが、例えば、製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスである場合には、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B は、冷媒により摂氏約マイナス 8 5 度以下に冷却されること、を特徴とし、被分離ガスが、発電所からの燃焼排ガスである場合には、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B は、冷媒により摂氏約マイナス 9 6 度以下に冷却されること、を特徴とし、被分離ガスが大気である場合には、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B は、冷媒により摂氏約マイナス 1 4 0 度以下に冷却されること、を特徴とする。

10

【 0 0 6 6 】

二酸化炭素が気固平衡状態となる温度は、被分離ガス中の二酸化炭素の分圧により異なる。よって、二酸化炭素昇華器の内部を、分圧の値に対応した気固平衡状態となる温度以下とすることで、二酸化炭素の昇華（固化）が開始され、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B を負圧とすることができる。これにより、再生塔 3 において放散された水蒸気および二酸化炭素の吸引を行うことが可能となる。

【 0 0 6 7 】

（第 2 の実施形態）

次に、本発明の二酸化炭素回収装置の第 2 の実施形態について、図面を参照しながら、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A と異なる点について説明する。

20

【 0 0 6 8 】

図 2 は、第 2 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 B の構成を概略的に表した図である。吸収塔 2 および再生塔 3 の構成は、第 1 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 A と同一である。再生塔 3 には、一台の水蒸気凝縮器 4 が、第 1 移送管 L 1 5 により、直列に接続されている。そして、水蒸気凝縮器 4 には、二酸化炭素を二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に排出するための第 2 移送管 L 1 6 が接続されている。

【 0 0 6 9 】

第 2 移送管 L 1 6 は切替弁 1 8 によって、分岐移送管 L 1 6 1 A と、分岐移送管 L 1 6 1 B とに分岐されている。この分岐により、水蒸気凝縮器 4 には、二酸化炭素昇華器 5 A と二酸化炭素昇華器 5 B とが、並列に接続されている。そして、切替弁 1 8 の動作により、再生塔 3 から排出され、水蒸気凝縮器 4 を通った二酸化炭素を、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B のどちらに流すか、選択することが可能となっている。また、分岐移送管 L 1 6 1 A , L 1 6 1 B 上には、それぞれ開閉弁 1 4 A , 1 4 B が設けられている。

30

【 0 0 7 0 】

二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B は、それぞれ液化燃料の再ガス化の際の冷熱を冷媒とする冷媒回路 1 2 A , 1 2 B が通っている。冷媒回路 1 2 A , 1 2 B は、それぞれ二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B を通った後に合流し、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B を流れた冷媒が、さらに水蒸気凝縮器 4、吸収塔 2 の順に冷媒が流れるように構成されている。

40

【 0 0 7 1 】

以上のような二酸化炭素回収装置 1 B によっても、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) において、二酸化炭素の昇華（固化）が行われる際、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は減圧され、負圧となる。これにより、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) がポンプの役割を果たし、再生塔 3 において放散された水蒸気および二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、水蒸気については再生塔 3 から水蒸気凝縮器 4 までの流れが生じ、二酸化炭素については再生塔 3 から水蒸気凝縮器 4 を通って、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) までの流れが生じるのである。

【 0 0 7 2 】

また、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) が減圧されるに伴い、直列に接続されている再生

50

塔 3 も減圧されるため、再生塔 3 における吸収液の沸騰温度が低下される。よって、吸収液を加熱するための消費エネルギーを抑えることが可能となっている。

【 0 0 7 3 】

さらに、ドライアイス化された二酸化炭素を、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) から回収する際には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) における二酸化炭素の昇華 (固化) を停止させる必要がある。しかし、上述したように、切替弁 1 8 によって、再生塔 3 から排出され、水蒸気凝縮器 4 を通った二酸化炭素を、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B のどちらに流すか、選択することが可能となっているため、一方の二酸化炭素昇華器 5 A から二酸化炭素を回収する際に、他方の二酸化炭素昇華器 5 B で二酸化炭素の昇華 (固化) を行い続けることができる。よって、より効率良く二酸化炭素を回収することが可能である。

10

【 0 0 7 4 】

以上説明したように、第 2 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 B は、再生塔 3 に、1 台の水蒸気凝縮器 4 が接続されており、水蒸気凝縮器 4 に、少なくとも 2 台の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B が並列に接続されていること、を特徴とする。

【 0 0 7 5 】

上記二酸化炭素回収装置 1 B によれば、再生塔 3 に、1 台の水蒸気凝縮器 4 が接続され、該水蒸気凝縮器 4 に、少なくとも 2 台の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B が並列に接続されているため、一方の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B でドライアイスを再度ガス化するなどして回収する際に、他方の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B を稼働させ続けることができるため、より効率良く二酸化炭素を回収することが可能である。

20

【 0 0 7 6 】

(第 3 の実施形態)

次に、本発明の二酸化炭素回収装置の第 3 の実施形態について、図面を参照しながら詳細に説明する。図 3 は、第 3 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 5 0 A の構成を概略的に表した図である。

【 0 0 7 7 】

二酸化炭素回収装置 5 0 A は、図 3 に示すように、分離装置 7 0 A , 7 0 B と、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、を備えている。分離装置 7 0 A には二酸化炭素昇華器 5 A が直列に接続され、分離装置 7 0 B には二酸化炭素昇華器 5 B が直列に接続されている。なお、分離装置 7 0 A と分離装置 7 0 B は同一の装置であり、二酸化炭素昇華器 5 A と二酸化炭素昇華器 5 B は同一の装置である。

30

【 0 0 7 8 】

分離装置 7 0 A , 7 0 B は、それぞれの内部に、二酸化炭素を吸着可能な吸着剤 7 0 1 A , 7 0 1 B が収容されている。吸着剤としては、例えば、ゼオライト (例えば、ユニオン昭和社製モレキュラーシーブ 1 3 X、東ソー社製 N S A - 7 0 0)、アミン含浸固体吸着剤 (アミン化合物を担持させた多孔性物質)、ゲート型吸着剤 (E L M - 1 1 [C u (b p y) ₂ (B F ₄) ₂]) 等が使用される。また、分離装置 7 0 A , 7 0 B のそれぞれは、吸着剤 7 0 1 A , 7 0 1 B よりも下部にガス導入口 7 0 2 A , 7 0 2 B を備えており、ガス導入口 7 0 2 A , 7 0 2 B には、分離装置 7 0 A , 7 0 B に燃焼排ガス (被分離ガスの一例) を供給するためのガス供給路 L 1 1 が接続されている。より詳細には、ガス供給路 L 1 1 は、切替弁 1 9 によって、分岐ガス供給路 L 1 1 1 と、分岐ガス供給路 L 1 1 2 とに分岐されており、分離装置 7 0 A のガス導入口 7 0 2 A には、分岐ガス供給路 L 1 1 1 が接続されるとともに、分離装置 7 0 B のガス導入口 7 0 2 B には、分岐ガス供給路 L 1 1 2 が接続されている。

40

【 0 0 7 9 】

分岐ガス供給路 L 1 1 1 は開閉弁 2 0 A を備え、分岐ガス供給路 L 1 1 2 は開閉弁 2 0 B を備えているため、開閉弁 2 0 A , 2 0 B を開弁状態とすることで、分離装置 7 0 A , 7 0 B に、燃焼排ガスが供給される。この燃焼排ガスは、発電や天然ガス精製の際に生じるものや、焼却炉や燃焼器や高炉等から生じるものを活用するものである。燃焼排ガスは、二酸化炭素を約 1 0 ~ 2 0 % 含有しており、その他に窒素、酸素などを含んでいる。

50

【 0 0 8 0 】

また、ガス供給路 L 1 1 が切替弁 1 9 によって分岐されていることで、ガス供給路 L 1 1 には、二酸化炭素回収ライン 5 0 0 A と二酸化炭素回収ライン 5 0 0 B とが並列に接続された状態となっている。二酸化炭素回収ライン 5 0 0 A は、燃焼排ガスが供給される上流側から順に、分離装置 7 0 A と二酸化炭素昇華器 5 A とが直列に接続されることにより構成されている。二酸化炭素回収ライン 5 0 0 B は、燃焼排ガスが供給される上流側から順に、分離装置 7 0 B と二酸化炭素昇華器 5 B とが直列に接続されることにより構成されている。切替弁 1 9 の動作させることで、ガス供給路 L 1 1 から供給される燃焼排ガスを、二酸化炭素回収ライン 5 0 0 A と二酸化炭素回収ライン 5 0 0 B のどちらに流すのか、選択することが可能となっている。

10

【 0 0 8 1 】

ガス導入口 7 0 2 A (7 0 2 B) から分離装置 7 0 A (7 0 B) に供給された燃焼排ガスは、分離装置 7 0 A (7 0 B) 内を上昇し、分離装置 7 0 A (7 0 B) に収容されている吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) に接触する。すると、吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) は、燃焼排ガスに含有される二酸化炭素を選択的に吸着する。この吸着により、燃焼排ガスから二酸化炭素を分離するのである。なお、ゼオライト等の吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) は、水分を含むと吸着性能の低下が懸念されるため、ガス供給路 L 1 1 上に水蒸気除去装置 (不図示) を設け、水蒸気除去装置によって水蒸気を除去した燃焼排ガスを、分離装置 7 0 A (7 0 B) に供給することが考えられる。また、燃焼排ガスには硫酸化物が含有されていることが考えられるため、ガス供給路 L 1 1 上に脱硫装置 (不図示) を設け、硫酸化物を除去した燃焼排ガスを分離装置 7 0 A (7 0 B) に供給するものとしても良い。

20

【 0 0 8 2 】

そして、二酸化炭素が分離された燃焼排ガス (窒素および酸素) は、分離装置 7 0 A (7 0 B) の頂部に設けられた排出口 7 0 4 A (7 0 4 B) から排出流路 L 1 2 A (L 1 2 B) に排出される。

【 0 0 8 3 】

吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) は、その体積等により、吸着可能な二酸化炭素の量が決まっているため、一定の量の二酸化炭素を吸着した吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) は、それ以上二酸化炭素を吸着することが出来なくなる。そこで、さらに二酸化炭素の吸着を行うためには、吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) の脱着を行う必要がある。脱着は、吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) を減圧下に置く必要があるため、分離装置 7 0 A (7 0 B) 内を減圧することで行われる。吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) から脱着された二酸化炭素は、分離装置 7 0 A (7 0 B) の頂部に設けられた放散口 7 0 3 A (7 0 3 B) から放散される。そして、二酸化炭素を脱着した後の吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) は、ガス導入口 7 0 2 A (7 0 2 B) から供給される燃焼排ガスと接触させることで、さらに二酸化炭素の吸着を行うことが出来る。

30

【 0 0 8 4 】

放散口 7 0 3 A (7 0 3 B) には移送管 L 1 5 A (L 1 5 B) が接続されており、放散口 7 0 3 A (7 0 3 B) から放散された二酸化炭素は、移送管 L 1 5 A (L 1 5 B) に排出される。この排出は、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に生じる負圧により、二酸化炭素が吸引されることで行われるものである (二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に生じる負圧については後述する。)

40

【 0 0 8 5 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は、移送管 L 1 5 A (L 1 5 B) により、分離装置 7 0 A (7 0 B) と接続されており、分離装置 7 0 A (7 0 B) から放散される二酸化炭素が二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に流ることが可能となっている。なお、移送管 L 1 5 A は、分離装置 7 0 A と二酸化炭素昇華器 5 A との間に、上流側から、減圧弁 9 A と開閉弁 1 4 A とを備えており、移送管 L 1 5 B は、分離装置 7 0 B と二酸化炭素昇華器 5 B との間に、上流側から、減圧弁 9 B と開閉弁 1 4 B とを備えている。なお、減圧弁 9 A と減圧弁 9 B は同一の装置であり、開閉弁 1 4 A と開閉弁 1 4 B は同一の装置である。

50

【 0 0 8 6 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は、内部に熱交換器 5 1 A (5 1 B) を備えている。該熱交換器 5 1 A (5 1 B) は、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を流れる冷媒により、内部の二酸化炭素を冷却するために用いられる。二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は、さらに、廃温熱や環境熱を利用したヒートポンプ 5 2 A (5 2 B) や、ドレン 5 3 A (5 3 B)、取り出し管 5 4 A (5 4 B) が接続されている。なお、ドレン 5 3 A (5 3 B) は、開閉弁 1 6 A (1 6 B) を備え、取り出し管 5 4 A (5 4 B) は、開閉弁 1 7 A (1 7 B) を備えている。

【 0 0 8 7 】

冷媒回路 1 2 A (1 2 B) は、冷媒が二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の内部を流れるように構成されている。冷媒には、液化燃料（流体の一例）の再ガス化後の冷熱が用いられる。液化燃料とは、例えば、液化天然ガスや液体水素や液化メタンなどが挙げられる。また、冷媒には、液化ガスの再ガス化後の冷熱を用いることも可能である。液化ガスとは、例えば、液化窒素や液化酸素などが挙げられる。

10

【 0 0 8 8 】

以上の構成を有する二酸化炭素回収装置 5 0 A における、冷媒と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の機能について、以下に説明する。

【 0 0 8 9 】

冷媒は、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を通り、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の有する熱交換器 5 1 A (5 1 B) により、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内を冷却する。液化燃料として液化天然ガスを用いた場合の冷熱は、摂氏マイナス 1 6 2 度であり、液体水素を用いた場合の冷熱は、摂氏マイナス 2 5 3 度であるが、熱交換器 5 1 A (5 1 B) の温度差制御や別途作動媒体または冷媒を介することで、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度に冷却される。例えば、被分離ガスとして製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスを用いる場合には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 8 5 度以下に冷却することが好ましい。また、被分離ガスとして発電所からの燃焼排ガスを用いる場合には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 9 6 度以下に冷却することが好ましい。さらにまた、被分離ガスとして大気を用いる場合には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度を、摂氏約マイナス 1 4 0 度以下に冷却することが好ましい。

20

30

【 0 0 9 0 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の温度が、二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度に冷却されることで、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の二酸化炭素は昇華（固化）され、ドライアイスとなる。昇華（固化）の際には、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内に微量な水分が残留する場合があるが、当該残留した水分は、開閉弁 1 6 A (1 6 B) を開弁することで、ドレン 5 3 A (5 3 B) から排出することが出来る。また、ドライアイス化された二酸化炭素を回収する際には、開閉弁 1 7 A (1 7 B) を開弁し、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) を常温に戻すことで、ドライアイスが昇華（気化）し、取り出し管 5 4 A (5 4 B) から回収する。この際、開閉弁 1 4 A (1 4 B)、1 6 A (1 6 B) は、閉弁状態とし、昇華（気化）した二酸化炭素が取り出し管 5 4 A (5 4 B) 以外に流入しないようにしておく。そして、回収された二酸化炭素は、例えば炭酸ガス等として活用される。

40

【 0 0 9 1 】

また、二酸化炭素を回収する際には、二酸化炭素昇華器 5 A、5 B における二酸化炭素の昇華（固化）を停止させる必要がある。しかし、上述したように、切替弁 1 9 によって、ガス供給路 L 1 1 から供給される燃焼排ガスを、二酸化炭素回収ライン 5 0 0 A、5 0 0 B のどちらに流すか、選択することが可能であるため、一方の二酸化炭素回収ライン 5 0 0 A の二酸化炭素昇華器 5 A から二酸化炭素を回収する際には、他方の二酸化炭素回収ライン 5 0 0 B の二酸化炭素昇華器 5 B で二酸化炭素の昇華（固化）を続けられることができ、その逆も可能である。よって、より効率良く二酸化炭素を回収することが可能であ

50

る。

【 0 0 9 2 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) において、二酸化炭素の昇華 (固化) が行われる際、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は減圧され、負圧となる。これにより、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) がポンプの役割を果たし、分離装置 7 0 A (7 0 B) から放散される二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、分離装置 7 0 A (7 0 B) から二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) までの、二酸化炭素の流れが生じ、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) における二酸化炭素の昇華 (固化) が促進される。

【 0 0 9 3 】

また、吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) の脱着は減圧下で行われるところ、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) が減圧されるに伴い、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) と直列に接続されている分離装置 7 0 A (7 0 B) も約 4 K P a まで減圧される。このため、分離装置 7 0 A (7 0 B) を減圧するためにポンプ等が必要ない。つまり、ポンプ等を動作させるための電力が必要なく、省エネルギー化を達成することが出来る。そして、省エネルギー化により、電力コストの増大や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えることが出来る。なお、分離装置 7 0 A (7 0 B) の圧力の調整は、移送管 L 1 5 A (L 1 5 B) 上に設けられた減圧弁 9 A (9 B) により行われる。

【 0 0 9 4 】

(第 3 の実施形態の変形例)

次に、第 3 の実施形態の変形例に係る二酸化炭素回収装置 5 0 B について、図 4 を用いて詳細に説明する。図 4 は、第 3 の実施形態の変形例に係る二酸化炭素回収装置 5 0 B の構成を概略的に表した図である。

【 0 0 9 5 】

上記第 3 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 5 0 A の二酸化炭素回収ライン 5 0 0 A (5 0 0 B) は、直列に接続された分離装置 7 0 A (7 0 B) と二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) とにより構成されていたが、二酸化炭素回収装置 5 0 B における二酸化炭素回収ライン 5 0 0 C (5 0 0 D) は、燃焼排ガスが供給される上流側から順に、分離装置 7 0 A (7 0 B) と、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) とが直列に接続されることにより構成されている。

【 0 0 9 6 】

ゼオライト等の吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) は、水分を含むと吸着性能の低下が懸念されるため、二酸化炭素回収装置 5 0 A においては、予め水蒸気が除去された燃焼排ガスが、分離装置 7 0 A (7 0 B) に供給されることとしていたが、近年、水分が含まれても吸着性能が低下しにくい吸着剤の研究開発がなされており、そのような吸着剤 (例えば、アミン含浸固体吸着剤) を分離装置 7 0 A (7 0 B) に用いた場合には、水蒸気が含まれた燃焼排ガスが分離装置 7 0 A (7 0 B) に供給されることが考えられる。

【 0 0 9 7 】

水蒸気が含まれた燃焼排ガスが分離装置 7 0 A (7 0 B) に供給された場合、分離装置 7 0 A (7 0 B) から二酸化炭素の放散を行う際に、二酸化炭素とともに水蒸気が放散されることが考えられる。二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) で、二酸化炭素とともに水蒸気を固化してしまつと、二酸化炭素の回収が困難となる。そこで、二酸化炭素回収装置 5 0 B のように、分離装置 7 0 A (7 0 B) と、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) と、を直列に接続すれば、分離装置 7 0 A (7 0 B) から放散された二酸化炭素および水蒸気は、まず水蒸気凝縮器 4 A (4 B) まで流れ、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) において水蒸気のみが、冷媒により冷却され、凝縮される。まず水蒸気が凝縮されることで、二酸化炭素のみが、次の二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) まで流れ、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) において、二酸化炭素のみが冷媒により冷却されて昇華 (固化) される。これにより、二酸化炭素の回収が容易となる。

【 0 0 9 8 】

分離装置 7 0 A (7 0 B) は、内部に吸着剤 7 0 1 A (7 0 1 B) が収容されている。

10

20

30

40

50

当該吸着剤は、水分が含まれても二酸化炭素の吸着性能が低下しにくいタイプのものである（例えば、アミン含浸固体吸着剤）。分離装置 70 A（70 B）のその他の構成は、二酸化炭素回収装置 50 A における分離装置 70 A（70 B）と同一の装置であるため、説明を省略する。

【 0 0 9 9 】

分離装置 70 A（70 B）は、第 1 移送管 L 15 A（L 15 B）を介して水蒸気凝縮器 4 A（4 B）と接続されており、分離装置 70 A（70 B）から放散される二酸化炭素と水蒸気の水蒸気凝縮器 4 A（4 B）に流れることが可能となっている。なお、第 1 移送管 L 15 A は、分離装置 70 A と水蒸気凝縮器 4 A との間に、上流側から、減圧弁 9 A と開閉弁 13 A とを備えており、第 1 移送管 L 15 B は、分離装置 70 B と水蒸気凝縮器 4 B との間に、上流側から、減圧弁 9 B と開閉弁 13 B とを備えている。

10

【 0 1 0 0 】

水蒸気凝縮器 4 A（4 B）は、内部に熱交換器 41 A（41 B）を備えている。該熱交換器 41 A は、冷媒回路 12 A（12 B）を流れる冷媒により、分離装置 70 A（70 B）から水蒸気凝縮器 4 A（4 B）に到達した水蒸気と二酸化炭素を冷却するために用いられる。水蒸気凝縮器 4 A（4 B）は、さらに、廃温熱や環境熱を利用したヒートポンプ 42 A（42 B）や、ドレン 43 A（43 B）が接続されている。該ドレン 43 A（43 B）は、開閉弁 15 A（15 B）を有している。

【 0 1 0 1 】

また、水蒸気凝縮器 4 A（4 B）は、第 2 移送管 L 16 A（L 16 B）を介して、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）に接続されている。なお、第 2 移送管 L 16 A（L 16 B）は、水蒸気凝縮器 4 A（4 B）と、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）との間に、開閉弁 14 A（14 B）を備えている。

20

【 0 1 0 2 】

二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）は、二酸化炭素回収装置 50 A における二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）と同一の装置であり、内部の熱交換器 51 A（51 B）を用いて、冷媒回路 12 A（12 B）を流れる冷媒によって二酸化炭素を昇華（固化）するものである。

【 0 1 0 3 】

冷媒回路 12 A（12 B）は、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）、水蒸気凝縮器 4 A（4 B）の順に冷媒が流れるように構成されている。冷媒に用いられるのは、二酸化炭素回収装置 50 A と同様に、液化燃料（流体の一例）の再ガス化後の冷熱である。

30

【 0 1 0 4 】

以上の構成を有する二酸化炭素回収装置 50 B における、冷媒と、水蒸気凝縮器 4 A（4 B）と、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）の機能について、以下に説明する。

【 0 1 0 5 】

冷媒は、冷媒回路 12 A（12 B）を通り、まず、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）の有する熱交換器 51 A（51 B）により、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）内を二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度に冷却し、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）内の二酸化炭素を昇華（固化）する。これは二酸化炭素回収装置 50 A と同様である。なお、二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度とは、上述の通り、被分離ガスとして、例えば、製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏約マイナス 85 度以下、被分離ガスとして発電所からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏約マイナス 96 度以下、被分離ガスとして大気を用いる場合には摂氏約マイナス 140 度以下である。

40

【 0 1 0 6 】

二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）内の二酸化炭素が昇華（固化）される際、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）は減圧され、負圧となる。これにより、二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）がポンプの役割を果たし、分離装置 70 A（70 B）から放散された水蒸気および二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、水蒸気および二酸化炭素が、水蒸気凝縮器 4 A（4 B）および二酸化炭素昇華器 5 A（5 B）に向かう流れが生じるのである。

50

【 0 1 0 7 】

また、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) が減圧されるに伴い、直列に接続されている分離装置 7 0 A (7 0 B) が約 4 K P a まで減圧される点は、二酸化炭素回収装置 5 0 A と同様である。

【 0 1 0 8 】

冷媒は、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の冷却を行った後、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) まで流れ、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) が有する熱交換器 4 1 A (4 1 B) により水蒸気凝縮器 4 A (4 B) 内を冷却する。冷媒は二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の熱交換器 5 1 A (5 1 B) における熱交換により温度が上昇されているため、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) 内は摂氏約 1 度に冷却される。

10

【 0 1 0 9 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) が摂氏約 1 度とされているため、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に生じた負圧によって吸引されて、分離装置 7 0 A (7 0 B) から排出された二酸化炭素と水蒸気は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) に流入されると、摂氏約 2 0 度に冷却される。これにより、水蒸気は凝縮されて水となる。当該水は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) の底部に貯められ、貯められた水は、開閉弁 1 5 A (1 5 B) を開弁することで、ドレン 4 3 A (4 3 B) により排出される。

【 0 1 1 0 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) に、水蒸気とともに流入された二酸化炭素は、摂氏約 2 0 度では気体のままであるため、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に吸引されることで、第 2 移

20

【 0 1 1 1 】

以上説明したように、第 3 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 5 0 A またはその変形例に係る二酸化炭素回収装置 5 0 B は、分離装置 7 0 A , 7 0 B は、二酸化炭素を吸着可能な吸着剤 7 0 1 A , 7 0 1 B を収容しており、吸着剤 7 0 1 A , 7 0 1 B が分離装置 7 0 A , 7 0 B に供給された被分離ガス (例えば燃焼排ガス) に含有される二酸化炭素を吸着することで、被分離ガスから二酸化炭素を分離すること、を特徴とする。

【 0 1 1 2 】

上記二酸化炭素回収装置 5 0 A , 5 0 B によれば、分離装置 7 0 A , 7 0 B は、二酸化炭素を吸着可能な吸着剤 (例えばゼオライト、アミン含浸固体吸着剤、ゲート型吸着剤等) 7 0 1 A , 7 0 1 B を収容しているため、被分離ガスに含有される二酸化炭素を吸着することで、被分離ガスから二酸化炭素を分離することが出来る。そして、吸着剤 7 0 1 A , 7 0 1 B に吸着された二酸化炭素は、吸着剤 7 0 1 A , 7 0 1 B から脱着を行うことで回収可能である。この脱着は、減圧下で行われることが一般的であるところ、冷媒によって二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B が減圧されるに伴い、直列に接続されている分離装置 7 0 A , 7 0 B も減圧されるため、分離装置 7 0 A , 7 0 B を減圧するためにポンプ等が必要ない。つまり、ポンプ等を動作させるための電力が必要なく、省エネルギー化を達成することが出来る。そして、省エネルギー化により、電力コストの増大や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えることが出来る。

30

40

【 0 1 1 3 】

また、第 3 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 5 0 A またはその変形例に係る二酸化炭素回収装置 5 0 B は、分離装置 7 0 A , 7 0 B は、二酸化炭素とともに水蒸気を放散すること、水蒸気を凝縮させる水蒸気凝縮器 4 A , 4 B を備えること、被分離ガス (例えば燃焼排ガス) が供給される上流側から順に、分離装置 7 0 A , 7 0 B と、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、が直列に接続されていること、冷媒回路 1 2 A , 1 2 B は、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、に接続されており、冷媒により、水蒸気の凝縮および二酸化炭素の昇華 (固化) が行われること、を特徴とする。

50

【 0 1 1 4 】

分離装置 7 0 A , 7 0 B から二酸化炭素とともに水蒸気が放散される場合、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B で、二酸化炭素とともに水蒸気を固化してしまうと、二酸化炭素の回収が困難となる。そこで、二酸化炭素回収装置 5 0 B のように、分離装置 7 0 A (7 0 B) と、水蒸気凝縮器 4 A , 4 B と、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、を直列に接続すれば、分離装置 7 0 A , 7 0 B から放散された二酸化炭素および水蒸気は、まず水蒸気凝縮器 4 A , 4 B まで流れ、水蒸気凝縮器において水蒸気のみが、冷媒により冷却され、凝縮される。まず水蒸気が凝縮されることで、二酸化炭素のみが、次の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B まで流れ、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B において、二酸化炭素のみが冷媒により冷却されて昇華(固化)される。これにより、二酸化炭素の回収が容易となる。

10

【 0 1 1 5 】

(第 4 の実施形態)

次に、第 4 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 0 0 A について、図 5 を参照しながら、第 3 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 5 0 A , 5 0 B と異なる点について説明する。図 5 は、第 4 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 0 0 A の構成を概略的に表した図である。

【 0 1 1 6 】

二酸化炭素回収装置 1 0 0 A は、図 5 に示すように、分離装置 8 0 と、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B と、を備えている。なお、2 台の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B は同一の装置である。

20

【 0 1 1 7 】

分離装置 8 0 は、内部に、二酸化炭素を選択的に透過する透過膜 8 0 3 が保持されている。透過膜 8 0 3 としては、例えば、ゼオライト膜(例えば、高シリカ C H A 型ゼオライト膜や、D D R 型ゼオライト膜)等の無機膜や、分子ゲート膜等の有機膜等が使用される。この透過膜 8 0 3 により、分離装置 8 0 の内部が、非透過側 8 0 1 と透過側 8 0 2 とに分割されている。非透過側 8 0 1 には、ガス導入口 8 0 4 が設けられており、ガス導入口 8 0 4 にはガス供給路 L 1 1 が接続されている。これにより、燃烧排ガスを分離装置 8 0 (非透過側 8 0 1) に供給することが出来る。なお、この分離装置 8 0 (非透過側 8 0 1) に供給される燃烧排ガスは、ガス供給路 L 1 1 上に設けられた不図示の水蒸気除去装置および脱硫装置によって、水蒸気および硫酸化物を除去したものである。

30

【 0 1 1 8 】

透過側 8 0 2 は、二酸化炭素を選択的に透過するものであるため、分離装置 8 0 (非透過側 8 0 1) に供給される燃烧排ガスに含有される成分のうち、二酸化炭素のみが透過側 8 0 2 に移動することができ、二酸化炭素以外の窒素、酸素などは、透過膜 8 0 3 を透過せずに非透過側 8 0 1 に残留する。

【 0 1 1 9 】

さらに、非透過側 8 0 1 には、排出口 8 0 6 が設けられており、排出口 8 0 6 には、非透過側 8 0 1 に残留した窒素、酸素などを排出するための排出流路 L 1 2 が接続されている。また、排出流路 L 1 2 は、開閉弁 8 1 を備えている。

【 0 1 2 0 】

透過側 8 0 2 には、放散口 8 0 5 が設けられており、該放散口 8 0 5 から透過膜 8 0 3 を透過した二酸化炭素が放散される。放散口 8 0 5 には移送管 L 1 5 が接続されており、放散口 8 0 5 から放散された二酸化炭素は、移送管 L 1 5 に排出される。この排出は、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に生じる負圧により、二酸化炭素が吸引されることで行われるものである。

40

【 0 1 2 1 】

移送管 L 1 5 は切替弁 1 1 によって、分岐移送管 L 1 5 1 A と、分岐移送管 L 1 5 1 B とに分岐されている。この分岐により、分離装置 8 0 (透過側 8 0 2) は、移送管 L 1 5 および分岐移送管 L 1 5 1 A を介して二酸化炭素昇華器 5 A と接続され、移送管 L 1 5 お

50

よび分岐移送管 L 1 5 1 B を介して二酸化炭素昇華器 5 B とが接続されている。そして、切替弁 1 1 の動作により、分離装置 8 0 から排出される二酸化炭素を、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B のどちらに流すか、選択することが可能となっている。なお、分岐移送管 L 1 5 1 A (L 1 5 1 B) は、切替弁 1 1 と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) との間に、開閉弁 1 4 A (1 4 B) を備えている。

【 0 1 2 2 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は、二酸化炭素回収装置 5 0 A , 5 0 B における二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) と同一の装置であり、内部の熱交換器 5 1 A (5 1 B) を用いて、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を流れる冷媒によって二酸化炭素を昇華 (固化) するものである。また、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) も、二酸化炭素回収装置 5 0 A における冷媒回路 1 2 A (1 2 B) と同一のものであるため、説明を省略する。

10

【 0 1 2 3 】

以上の構成を有する二酸化炭素回収装置 1 0 0 A における、冷媒と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の機能について、以下に説明する。

【 0 1 2 4 】

冷媒は、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を通り、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の有する熱交換器 5 1 A (5 1 B) により、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内を二酸化炭素の昇華 (固化) に適した温度に冷却し、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の二酸化炭素を昇華 (固化) する。これは二酸化炭素回収装置 5 0 A と同様である。なお、二酸化炭素の昇華 (固化) に適した温度とは、上述の通り、被分離ガスとして製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏約マイナス 8 5 度以下、被分離ガスとして、例えば、発電所からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏マイナス 9 6 度以下、被分離ガスとして大気を用いる場合には摂氏マイナス 1 4 0 度以下である。

20

【 0 1 2 5 】

二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B から二酸化炭素を回収する際には、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B における二酸化炭素の昇華 (固化) を停止させる必要がある。しかし、上述したように、切替弁 1 1 の動作により、分離装置 8 0 から排出される二酸化炭素を、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B のどちらに流すか、選択することが可能となっているため、一方の二酸化炭素昇華器 5 A から二酸化炭素を回収する際に、他方の二酸化炭素昇華器 5 B で二酸化炭素の昇華 (固化) を行い続けることができ、その逆も可能である。よって、より効率良く二酸化炭素を回収することが可能である。

30

【 0 1 2 6 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の二酸化炭素が昇華 (固化) される際、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は減圧され、負圧となる。これにより、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) がポンプの役割を果たし、分離装置 8 0 から放散された二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、分離装置 8 0 から二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) までの、二酸化炭素の流れが生じ、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) における二酸化炭素の昇華 (固化) が促進される。

【 0 1 2 7 】

また、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) が減圧されるに伴い、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) と直列に接続されている分離装置 8 0 (透過側 8 0 2) も約 4 K P a まで減圧される。このため、分離装置 8 0 (透過側 8 0 2) を減圧するためのポンプ等を要さずとも、分離装置 8 0 の非透過側 8 0 1 に供給された燃焼排ガスに含有される二酸化炭素が、透過側 8 0 2 に吸引され、二酸化炭素の分離が促進される。つまり、ポンプ等を動作させるための電力が必要なく、省エネルギー化を達成することが出来る。そして、省エネルギー化により、電力コストの増大や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えることが出来る。なお、分離装置 8 0 の圧力の調整は、移送管 L 1 5 上に設けられた減圧弁 9 により行われる。なお、この二酸化炭素の分離を行う際は、排出流路 L 1 2 から分離装置 8 0 に逆流が生じないように、開閉弁 8 1 を閉弁した状態で行われる。そして、非透過側 8 0 1 が二酸化炭素以外の窒素、酸素などで満たされ、それ以上燃焼排ガスを非透過側 8 0 1 に供給

40

50

することが出来なくなった場合に、開閉弁 8 1 を開弁し、当該窒素、酸素などを排出する。

【 0 1 2 8 】

(第 4 の実施形態の変形例)

次に、第 4 の実施形態の変形例に係る二酸化炭素回収装置 1 0 0 B について、図 6 を用いて詳細に説明する。図 6 は、第 4 の実施形態の変形例に係る二酸化炭素回収装置 1 0 0 B の構成を概略的に表した図である。

【 0 1 2 9 】

二酸化炭素回収装置 1 0 0 B は、分離装置 8 0 と、水蒸気凝縮器 4 A および二酸化炭素昇華器 5 A が直列に接続されてなる二酸化炭素回収ライン 1 0 A と、水蒸気凝縮器 4 B および二酸化炭素昇華器 5 B が直列に接続されてなる二酸化炭素回収ライン 1 0 B と、から構成されている。

10

【 0 1 3 0 】

水蒸気が含まれた燃焼排ガスが分離装置 8 0 に供給された場合、分離装置 8 0 から二酸化炭素の放散を行う際に、二酸化炭素とともに水蒸気が放散されることが考えられる。二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) で、二酸化炭素とともに水蒸気を固化してしまうと、二酸化炭素の回収が困難となる。そこで、二酸化炭素回収装置 1 0 0 B のように、分離装置 8 0 と、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) と、を直列に接続すれば、分離装置 8 0 から放散された二酸化炭素および水蒸気は、まず水蒸気凝縮器 4 A (4 B) まで流れ、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) において水蒸気のみが、冷媒により冷却され、凝縮される。まず水蒸気が凝縮されることで、二酸化炭素のみが、次の二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) まで流れ、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) において、二酸化炭素のみが冷媒により冷却されて昇華 (固化) される。これにより、二酸化炭素の回収が容易となる。

20

【 0 1 3 1 】

分離装置 8 0 は、上記した二酸化炭素回収装置 1 0 0 A における分離装置 8 0 と同一の装置である。分離装置 8 0 から放散された二酸化炭素と水蒸気とは、第 1 移送管 L 1 5 に排出される。この排出は、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B における二酸化炭素の昇華 (固化) の際に生じる負圧により、二酸化炭素と水蒸気が吸引されることで行われるものである。

【 0 1 3 2 】

第 1 移送管 L 1 5 は切替弁 1 1 によって、分岐移送管 L 1 5 1 A と、分岐移送管 L 1 5 1 B とに分岐されている。この分岐により、分離装置 8 0 (透過側 8 0 2) は、第 1 移送管 L 1 5 および分岐移送管 L 1 5 1 A を介して、水蒸気凝縮器 4 A および二酸化炭素昇華器 5 A からなる二酸化炭素回収ライン 1 0 A と接続され、第 1 移送管 L 1 5 および分岐移送管 L 1 5 1 B を介して、水蒸気凝縮器 4 B および二酸化炭素昇華器 5 B からなる二酸化炭素回収ライン 1 0 B と接続されている。そして、切替弁 1 1 の動作により、分離装置 8 0 (透過側 8 0 2) から放散される二酸化炭素と水蒸気を、二酸化炭素回収ライン 1 0 A , 1 0 B のどちらに流すか、選択することが可能となっている。なお、分岐移送管 L 1 5 1 A (L 1 5 1 B) は、切替弁 1 1 と水蒸気凝縮器 4 A (4 B) との間に、開閉弁 1 3 A (1 3 B) を備えている。

30

40

【 0 1 3 3 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) は、二酸化炭素回収装置 5 0 B における水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と同一の装置であり、内部の熱交換器 4 1 A (4 1 B) を用いて、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を流れる冷媒によって水蒸気を凝縮するものである。水蒸気凝縮器 4 A (4 B) は、第 2 移送管 L 1 6 A (L 1 6 B) を介して、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に接続されている。なお、第 2 移送管 L 1 6 A (L 1 6 B) は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) との間に、開閉弁 1 4 A (1 4 B) を備えている。

【 0 1 3 4 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は、二酸化炭素回収装置 5 0 A , 5 0 B , 1 0 0 A における二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) と同一の装置であり、内部の熱交換器 5 1 A (5 1 B

50

）を用いて、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を流れる冷媒によって二酸化炭素を昇華（固化）するものである。

【 0 1 3 5 】

また、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) は、二酸化炭素回収装置 5 0 B と同様に、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B)、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) の順に冷媒が流れるように構成されている。冷媒に用いられるのは、二酸化炭素回収装置 5 0 A , 5 0 B , 1 0 0 A と同様に、液化燃料（流体の一例）の再ガス化後の冷熱である。

【 0 1 3 6 】

以上の構成を有する二酸化炭素回収装置 1 0 0 B における、冷媒と、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) と、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の機能について、以下に説明する。 10

【 0 1 3 7 】

冷媒は、冷媒回路 1 2 A (1 2 B) を通り、まず、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の有する熱交換器 5 1 A (5 1 B) により、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内を二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度に冷却し、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の二酸化炭素を昇華（固化）する。これは二酸化炭素回収装置 5 0 A , 5 0 B , 1 0 0 A と同様である。なお、二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度とは、上述の通り、被分離ガスとして、例えば、製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏約マイナス 8 5 度以下、被分離ガスとして発電所からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏約マイナス 9 6 度以下、被分離ガスとして大気を用いる場合には摂氏約マイナス 1 4 0 度以下である。 20

【 0 1 3 8 】

二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の二酸化炭素が昇華（固化）される際、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) は減圧され、負圧となる。これにより、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) がポンプの役割を果たし、分離装置 8 0 から放散された水蒸気および二酸化炭素の吸引が行われる。この吸引により、水蒸気および二酸化炭素が、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) および二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に向かう流れが生じるのである。

【 0 1 3 9 】

また、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) が減圧されるに伴い、直列に接続されている分離装置 8 0 (透過側 8 0 2) が約 4 K P a まで減圧される点は、二酸化炭素回収装置 1 0 0 A と同様である。 30

【 0 1 4 0 】

冷媒は、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) 内の冷却を行った後、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) まで流れ、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) が有する熱交換器 4 1 A (4 1 B) により水蒸気凝縮器 4 A (4 B) 内を冷却する。冷媒は二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の熱交換器 5 1 A (5 1 B) における熱交換により温度が上昇されているため、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) 内は摂氏約 1 度に冷却される。

【 0 1 4 1 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) が摂氏約 1 度とされているため、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に生じた負圧によって吸引されて、分離装置 8 0 (透過側 8 0 2) から排出された二酸化炭素と水蒸気は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) に流入されると、摂氏約 2 0 度に冷却される。これにより、水蒸気は凝縮されて水となる。当該水は、水蒸気凝縮器 4 A (4 B) の底部に貯められ、貯められた水は、開閉弁 1 5 A (1 5 B) を開弁することで、ドレン 4 3 A (4 3 B) により排出される。 40

【 0 1 4 2 】

水蒸気凝縮器 4 A (4 B) に、水蒸気とともに流入された二酸化炭素は、摂氏約 2 0 度では気体のままであるため、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に吸引されることで、第 2 移送管 L 1 6 A (L 1 6 B) を通り、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) へ流入される。そして、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) に流入した二酸化炭素は、上述したように昇華（固化）される。

【 0 1 4 3 】

以上説明したように、第４の実施形態に係る二酸化炭素回収装置１００Ａまたはその変形例に係る二酸化炭素回収装置１００Ｂは、分離装置８０は、二酸化炭素を選択的に透過する透過膜８０３を備えており、透過膜８０３が分離装置８０に供給された被分離ガス（例えば燃焼排ガス）に含有される二酸化炭素を透過させることで、被分離ガス（例えば燃焼排ガス）から二酸化炭素を分離すること、二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂは、分離装置８０の透過膜８０３の透過側８０２に接続されていること、を特徴とする。

【 0 1 4 4 】

上記二酸化炭素回収装置１００Ａ，１００Ｂによれば、分離装置８０は、二酸化炭素を選択的に透過する透過膜（例えば、ゼオライト膜等の無機膜や、分子ゲート膜等の有機膜）８０３を備えているため、分離装置８０に供給された被分離ガス（例えば燃焼排ガス）に含有される二酸化炭素が透過膜８０３の透過側８０２に分離される。そして、二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂは、分離装置８０の透過膜８０３の透過側８０２に接続されているため、被分離ガスから分離された二酸化炭素は、二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂにおいて、冷媒により冷却され、昇華（固化）される。この昇華（固化）によって二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂが減圧されることで、二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂが接続される分離装置８０の透過側８０２も減圧されるため、透過膜８０３による二酸化炭素の分離が促進される。減圧するためにポンプ等を要しないため、電力が必要なく、省エネルギー化を達成することが出来る。そして、省エネルギー化により、電力コストの増大や、発電のための新たな二酸化炭素の発生を抑えることが出来る。

【 0 1 4 5 】

ここまで説明した二酸化炭素回収装置１Ａ，１Ｂ，５０Ａ，５０Ｂ，１００Ａ，１００Ｂにおいては、二酸化炭素を昇華（固化）し、ドライアイスを得た後、二酸化炭素昇華器５Ａ（５Ｂ）の内部温度を常温に戻すことで、ドライアイス（昇華（気化）し、取り出し管５４Ａ（５４Ｂ）から回収することとしている。このように、二酸化炭素を気体として回収する場合、例えば、化学プラントが二酸化炭素回収装置１Ａ，１Ｂ，５０Ａ，５０Ｂ，１００Ａ，１００Ｂに隣接して設けられていれば、気体として回収した二酸化炭素を、配管を通じて化学プラントに供給することが出来るため、効率的に二酸化炭素を利用することが出来る。

【 0 1 4 6 】

しかし、二酸化炭素回収装置１Ａ，１Ｂ，５０Ａ，５０Ｂ，１００Ａ，１００Ｂにおいては、二酸化炭素を気体として回収するのではなく、液体として回収することとしても良い。二酸化炭素を回収した後に輸送することを考慮すると、液体として回収した方が、ローリーでの輸送が容易となるため好ましい。また、二酸化炭素昇華器５Ａ（５Ｂ）において、ドライアイス（昇華（気化）させるよりも、液化させた方が、二酸化炭素昇華器５Ａ（５Ｂ）の内部の温度上昇幅を小さくすることが出来る。よって、二酸化炭素昇華器５Ａ（５Ｂ）から二酸化炭素を取り出した後、再び二酸化炭素を昇華（固化）するために、二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂを冷却する際に冷媒として用いられる冷熱の節約を図ることが出来る。

【 0 1 4 7 】

図７は、二酸化炭素の状態図である。この状態図によれば、融解線ＭＬと気化線ＶＬとに囲まれた領域が、二酸化炭素の液相（以下、液化炭酸という）を得られる領域である。よって、二酸化炭素昇華器５Ａ（５Ｂ）から液化炭酸を回収するためには、ドライアイスの温度を、少なくとも、融解線ＭＬと気化線ＶＬと昇華線ＳＬとが交わる三重点ＴＰまで上昇させる必要がある。しかし、三重点ＴＰに到達するまでに一定量の二酸化炭素が気化してしまい、この気化した二酸化炭素は、定積状態における温度変化によっては液化することが出来ないため、ロスとなってしまふ。そこで、このロスを可能な限り小さくするため、以下のように二酸化炭素昇華器５Ａ（５Ｂ）を制御することが好ましい。

【 0 1 4 8 】

二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂにおいて、二酸化炭素の昇華（固化）が行われた後、二酸化炭素昇華器５Ａ，５Ｂのヒートポンプ５２Ａ，５２Ｂ（加熱媒体の一例）を、二酸化炭素の三重点以上の温度に設定する。これにより、二酸化炭素を昇華（固化）するために冷

10

20

30

40

50

却されていた二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B の内部を加熱し、ドライアイスとなっている二酸化炭素を液化させる。

【 0 1 4 9 】

そして、ヒートポンプ 5 2 A , 5 2 B による加熱は、得られた液化炭酸の温度が、摂氏マイナス 5 6 . 6 度以上、摂氏マイナス 5 0 度以下となった時点で停止する。これは、よりロスを少なく、液化炭酸を回収するためである。

液化炭酸の温度が、摂氏マイナス 5 0 度から摂氏 1 0 度程度の範囲となる場合に、よりロスが少ない状態で液化炭酸を回収可能なことを、出願人は実験により確認している。しかし、二酸化炭素の温度が三重点に到達すると、そこから急激に温度が上昇し、ロスが増大するおそれがある。そこで、摂氏マイナス 5 6 . 6 度以上、摂氏マイナス 5 0 度以下となつた時点で加熱を停止することで、液化炭酸の温度を、上記した摂氏マイナス 5 0 度から摂氏 1 0 度程度の範囲とすることが出来る。

10

【 0 1 5 0 】

ヒートポンプ 5 2 A , 5 2 B による加熱を停止するタイミングとしては、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B の内部の圧力が 5 1 8 k P a 以上、8 0 0 k P a 以下となつた時点としても良い。この圧力の範囲は、図 7 における気化線 V L 上の、摂氏マイナス 5 6 . 6 度以上、摂氏マイナス 5 0 度以下に対応するものである。

【 0 1 5 1 】

また、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B から液化炭酸を回収するために、ヒートポンプ 5 2 A , 5 2 B による加熱を開始するのは、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B の体積に対するドライアイスの体積の比（以下、体積比という）が 0 . 1 以上、0 . 3 以下の範囲となるまで、二酸化炭素の昇華（固化）を行った後であることが望ましい。これにより、よりロスが少ない状態で液化炭酸を回収することが可能である。

20

【 0 1 5 2 】

図 8 は、液化炭酸の温度が摂氏マイナス 5 0 度で、かつ、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B の内部の圧力が約 5 3 0 k P a の条件（以下、回収条件）で液化炭酸を回収するとした場合において、所定の体積比毎に、ドライアイスの質量に対する、回収可能な液化炭酸の質量割合と、気化した二酸化炭素の質量割合（つまり、回収できずにロスとなる二酸化炭素の質量割合）を示した表である。

【 0 1 5 3 】

例えば、体積比を 0 . 1 2 として、上記回収条件で液化炭酸を回収した場合、回収可能な液化炭酸の質量割合は 0 . 9 3 8 であり、気化した二酸化炭素の質量割合は 0 . 0 6 2 であった。体積比を 0 . 1 2 から増大させるにつれ、回収可能な液化炭酸の質量割合が増加し、これに伴いロスは低下する。そして、体積比を 0 . 3 として、上記回収条件で液化炭酸を回収した場合、回収可能な液化炭酸の質量割合は 0 . 9 7 9 であり、気化した二酸化炭素の質量割合は 0 . 0 2 1 であった。つまり、体積比が 0 . 1 以上、0 . 3 以下の範囲となるまで二酸化炭素を昇華（固化）させた後であれば、上記の通りドライアイスの質量のうち、9 0 % 以上を液化炭酸として回収可能である。

30

【 0 1 5 4 】

なお、出願人は、体積比が 0 . 1 より小さいと、回収可能な液化炭酸の質量割合が 0 . 9 を下回ることを、実験により確認している。0 . 9 を下回ると、その分ロスが増大するため、好ましくない。また、出願人は、体積比が 0 . 3 より大きいと、回収可能な液化炭酸の質量割合は飽和状態となることを、実験により確認している。体積比を 0 . 3 以上となるまで二酸化炭素の昇華（固化）を行うこととすると、昇華（固化）に要する時間が増大するのみで、回収可能な液化炭酸の質量割合増大せず、二酸化炭素の回収効率が悪くなるため、好ましくない。

40

【 0 1 5 5 】

以上のようにして、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) において得られた液化炭酸を回収するには、取り出し管 5 4 A (5 4 B) の開閉弁 1 7 A (1 7 B) を開弁すれば良い。二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の内部を加熱したことにより、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B)

50

の内部の圧力が上昇しているため、開閉弁 17 A (17 B) を開弁することで、液化された二酸化炭素が、二酸化炭素昇華器 5 A (5 B) の内部の圧力に押し出されて、取り出し管 54 A (54 B) から出力される。

【 0 1 5 6 】

(第 5 の実施形態)

また、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B から液化炭酸を回収する場合には、例えば、図 9 に示す第 5 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 C のように、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に、気液分離器 91 A , 91 B を接続しても良い。この気液分離器 91 A , 91 B は、例えば、遠心力又は表面張力等を利用して液体と気体とを分離することが可能な装置である。なお、図 9 に示す二酸化炭素回収装置 1 C は、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に、気液分離器 91 A , 91 B が接続されていることを除いては、図 1 に示す二酸化炭素回収装置 1 A と同一の構成を有している。ただし、図 9 に示す構成はあくまで一例であり、気液分離器 91 A , 91 B は、二酸化炭素回収装置 1 B , 50 A , 50 B , 100 A , 100 B の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に接続することも可能である。

10

【 0 1 5 7 】

二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に、窒素など摂氏 - 162 度 (上記した冷熱の温度) でもガス状である気体 (以下、一例である窒素を以って説明する) が流入した場合、窒素は、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B から液化炭酸を回収する際の温度・圧力条件においてもガス状であるため、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B の取り出し管 54 A (54 B) から液化炭酸を出力する際に、液化炭酸とともに排出されるおそれがある。そこで、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に、気液分離器 91 A , 91 B を接続すれば、取り出し管 54 A (54 B) から気液分離器 91 A , 91 B に、液化炭酸と窒素とが流入されるため、気液分離器 91 A , 91 B において、液化炭酸と、窒素とを分離することが可能である。

20

【 0 1 5 8 】

気液分離器 91 A , 91 B には、開閉弁 92 A , 92 B を備えるガス排出管 94 A , 94 B が接続されており、開閉弁 92 A , 92 B を開弁することで、ガス排出管 94 A , 94 B から分離された窒素を排出することが出来る。また、気液分離器 91 A , 91 B には、開閉弁 93 A , 93 B を備える液化炭酸排出管 95 A , 95 B が接続されており、開閉弁 93 A , 93 B を開弁することで、液化炭酸排出管 95 A , 95 B から、窒素を分離した後の液化炭酸を取り出すことが出来る。

30

【 0 1 5 9 】

(第 6 の実施形態)

さらにまた、二酸化炭素を液体として回収する場合には、図 10 に示す第 6 の実施形態に係る二酸化炭素回収装置 1 D のように、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に、固液分離器 96 A , 96 B を接続しても良い。この固液分離器 96 A , 96 B は、例えば、沈降法、遠心分離法、圧搾法、濾過法等を利用して液体と固体とを分離することが可能な装置である。なお、図 10 に示す二酸化炭素回収装置 1 D は、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に、固液分離器 96 A , 96 B が接続されていることを除いては、図 1 に示す二酸化炭素回収装置 1 A と同一の構成を有している。ただし、図 10 に示す構成はあくまで一例であり、固液分離器 96 A , 96 B は、二酸化炭素回収装置 1 B , 50 A , 50 B , 100 A , 100 B の二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に接続することも可能である。

40

【 0 1 6 0 】

二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B において、ドライアイスから液化炭酸を得る過程で水分が混入していると、当該水分は、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B から液化炭酸を回収する際の温度条件においては、固化されて氷となっている。この氷は、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B の取り出し管 54 A (54 B) から液化炭酸を出力する際に、液化炭酸とともに排出されるおそれがある。そこで、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に、固液分離器 96 A , 96 B を接続すれば、取り出し管 54 A (54 B) から固液分離器 96 A , 96 B に、液化炭酸と氷とが流入されるため、固液分離器 96 A , 96 B において、液化炭酸と、氷とを分離することが可能である。

50

【 0 1 6 1 】

固液分離器 9 6 A , 9 6 B には、開閉弁 9 7 A , 9 7 B を備える液化炭酸排出管 9 8 A , 9 8 B が接続されており、開閉弁 9 7 A , 9 7 B を開弁することで、液化炭酸排出管 9 8 A , 9 8 B から、氷を分離した後の液化炭酸を取り出すことが出来る。

【 0 1 6 2 】

なお、上記説明においては、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に対し、気液分離器 9 1 A , 9 1 B または固液分離器 9 6 A , 9 6 B を接続した状態を説明しているが、二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B に対して、気液分離器 9 1 A , 9 1 B 、固液分離器 9 6 A , 9 6 B の順に直列に接続しても良い。

【 0 1 6 3 】

(二酸化炭素昇華器の構成について)

上記した二酸化炭素回収装置 1 A , 1 B , 1 C , 1 D , 5 0 A , 5 0 B , 1 0 0 A , 1 0 0 B に用いられる二酸化炭素昇華器 5 A , 5 B は、図 1 3 および図 1 4 に示すような構成を有することとしても良い。なお、図 1 3 と、図 1 4 と、以下の説明においては、単に二酸化炭素昇華器 5 と表記する。

【 0 1 6 4 】

二酸化炭素昇華器 5 は、二酸化炭素の昇華 (固化) を行うための昇華室 5 5 と、昇華 (固化) された二酸化炭素であるドライアイス 9 0 を回収するための回収室 5 6 と、が連結されてなる。

【 0 1 6 5 】

昇華室 5 5 には、移送管 L 2 1 が接続されており、当該移送管 L 2 1 から昇華室 5 5 の内部へ二酸化炭素が導入される。なお、この移送管 L 2 1 は、二酸化炭素回収装置 1 A における第 2 移送管 L 1 6 A , L 1 6 B (図 1 参照)、または、二酸化炭素回収装置 1 B における分岐移送管 L 1 6 1 A , L 1 6 1 B (図 2 参照)、または、二酸化炭素回収装置 5 0 A における移送管 L 1 5 A , L 1 5 B (図 3 参照)、または、二酸化炭素回収装置 5 0 B における第 2 移送管 L 1 6 A , L 1 6 B (図 4 参照)、または、二酸化炭素回収装置 1 0 0 A における分岐移送管 L 1 5 1 A , L 1 5 1 B (図 5 参照)、または、二酸化炭素回収装置 1 0 0 B における第 2 移送管 L 1 6 A , L 1 6 B (図 6 参照)、または、二酸化炭素回収装置 1 C における第 2 移送管 L 1 6 A , L 1 6 B (図 9 参照)、または、二酸化炭素回収装置 1 D における第 2 移送管 L 1 6 A , L 1 6 B (図 1 0 参照) に相当するものである。

【 0 1 6 6 】

昇華室 5 5 の内部には、冷媒回路 1 2 に接続された熱交換器 5 1 が配設されている。これにより、昇華室 5 5 の内部を二酸化炭素の昇華 (固化) に適した温度に冷却することが出来る。なお、二酸化炭素の昇華 (固化) に適した温度とは、上述の通り、被分離ガスとして製鉄工場またはセメント工場からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏約マイナス 8 5 度以下、被分離ガスとして、例えば、発電所からの燃焼排ガスを用いる場合には摂氏約マイナス 9 6 度以下、被分離ガスとして大気を用いる場合には摂氏約マイナス 1 4 0 度以下である。また、熱交換器 5 1 の外周面は、昇華室 5 5 の内部で昇華 (固化) されたドライアイス 9 0 が付着する付着面 5 7 (付着部の一例) である。

【 0 1 6 7 】

また、付着面 5 7 には、ヒータ 5 8 が接続されている。このヒータ 5 8 は、例えばカートリッジヒータである。ヒータ 5 8 が動作することで、熱交換器 5 1 の付着面 5 7 を局所的に加熱可能となっている。付着面 5 7 を加熱することで、付着面 5 7 に付着しているドライアイス 9 0 の、付着面 5 7 と接触している面を昇華 (気化) することができる。これにより、付着面 5 7 からドライアイス 9 0 を落下させることが可能となっている。

【 0 1 6 8 】

昇華室 5 5 は、回収室 5 6 側の端部に第 1 開口 5 5 2 を備えている。さらに昇華室 5 5 は、熱交換器 5 1 と第 1 開口 5 5 2 との間に、第 1 開口 5 5 2 に向かって下り坂を形成するように傾斜部 5 5 1 を備えている。

10

20

30

40

50

【 0 1 6 9 】

回収室 5 6 は、昇華室 5 5 側の端部に第 2 開口 5 6 1 を備えている。そして、昇華室 5 5 の第 1 開口 5 5 2 と、回収室 5 6 の第 2 開口 5 6 1 とが、遮断装置 5 9 を介して接続されている。遮断装置 5 9 を閉状態とすれば、昇華室 5 5 の内部と回収室 5 6 の内部とが遮断された状態となり（図 1 3 ）、遮断装置 5 9 を開状態とすれば、昇華室 5 5 の内部と回収室 5 6 の内部とが連通した状態となる（図 1 4 ）。回収室 5 6 は、付着面 5 7 の下方に位置しているため、昇華室 5 5 の内部と回収室 5 6 の内部とが連通した状態となれば、付着面 5 7 から落下するドライアイス 9 0 を受け取ることが可能である。また、回収室 5 6 には、取り出し管 5 4 が接続されている。この取り出し管 5 4 は、上述の取り出し管 5 4 A（5 4 B）と同一のものである。

10

【 0 1 7 0 】

以上のような構成の二酸化炭素昇華器 5 を用いた場合、以下のように二酸化炭素の回収を行う。

【 0 1 7 1 】

まず、昇華室 5 5 の内部を、熱交換器 5 1（冷媒回路 1 2 を流れる冷媒）によって、昇華室 5 5 の内部を二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度に冷却する。このとき、遮断装置 5 9 を閉状態としておく。そして、昇華室 5 5 の内部が冷却された状態で、移送管 L 2 1 から昇華室 5 5 内に二酸化炭素を導入する。昇華室 5 5 内に導入された二酸化炭素は、昇華（固化）され、図 1 3 に示すように、付着面 5 7 に付着する。

【 0 1 7 2 】

ドライアイス 9 0 が付着面 5 7 に付着している状態で、ヒータ 5 8 を動作させると、付着面 5 7 が加熱され、ドライアイス 9 0 の付着面 5 7 と接触している面が昇華（気化）する。この昇華（気化）により、付着面 5 7 に付着していたドライアイス 9 0 が、重力によって、図 1 4 の矢印 A 1 1 に示すように傾斜部 5 5 1 に向かって落下する。そして、傾斜部 5 5 1 に落下したドライアイス 9 0 は、矢印 A 1 2 に示すように、重力によって、傾斜部 5 5 1 を第 1 開口 5 5 2 に向かって滑っていく。このとき、遮断装置 5 9 を開状態としておくことで、ドライアイス 9 0 は、第 1 開口 5 5 2 から、第 2 開口 5 6 1 を通り、回収室 5 6 に収容される。回収室 5 6 に収容されたドライアイス 9 0 は、昇華（気化）または液化し、取り出し管 5 4 から回収する。なお、回収室 5 6 の筐体に、回収室 5 6 の内部にアクセス可能な扉等を設け、該扉から固体のまま回収することとしても良い。

20

【 0 1 7 3 】

付着面 5 7 からドライアイス 9 0 を落下させるためには、ドライアイス 9 0 の付着面 5 7 との接触面を昇華（気化）すれば足りるため、ヒータ 5 8 による加熱は短時間で良い。そのため、二酸化炭素の昇華（固化）に適した温度まで冷却されていた昇華室 5 5 の温度を、ドライアイス 9 0 が気化または液化するまで上昇させる必要がない。つまり、ドライアイス 9 0 回収の際に昇華室 5 5 の温度変動幅を小さくすることが出来るため、昇華室 5 5 に加わる熱衝撃を抑えることが可能である。また、温度変動幅が小さいことで、ドライアイス 9 0 を回収した後、昇華室 5 5 で再び二酸化炭素の昇華（固化）を行うに当たり、昇華室 5 5 を冷却するために要する冷却熱や時間のロスを抑えることが可能である。

30

【 0 1 7 4 】

なお、上記した二酸化炭素回収装置 1 A, 1 B, 1 C, 1 D, 5 0 A, 5 0 B, 1 0 0 A, 1 0 0 B のそれぞれにおいては、2 台の二酸化炭素昇華器 5 A, 5 B を用いている（図 1、図 2、図 3、図 4、図 5、図 6、図 9、図 1 0 参照）。これは、一方の二酸化炭素昇華器 5 A, 5 B において昇華（固化）が完了した二酸化炭素を回収している間に、他方の二酸化炭素昇華器 5 A, 5 B において二酸化炭素の昇華（固化）を行うことを可能とするためであり、これにより、二酸化炭素の回収効率を高めることが可能である。

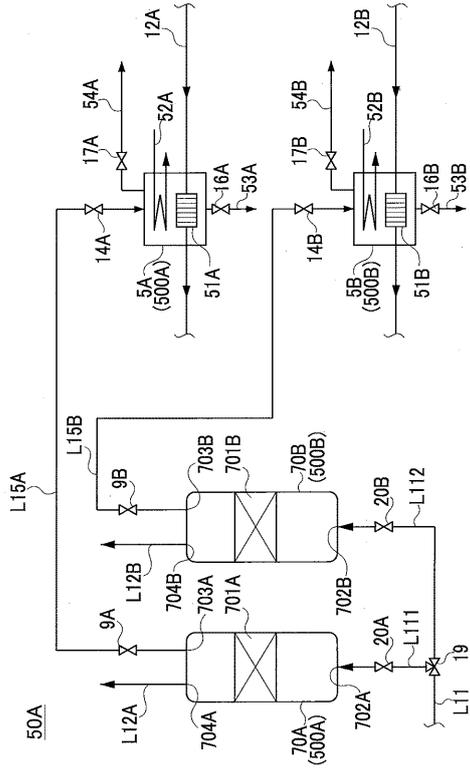
40

【 0 1 7 5 】

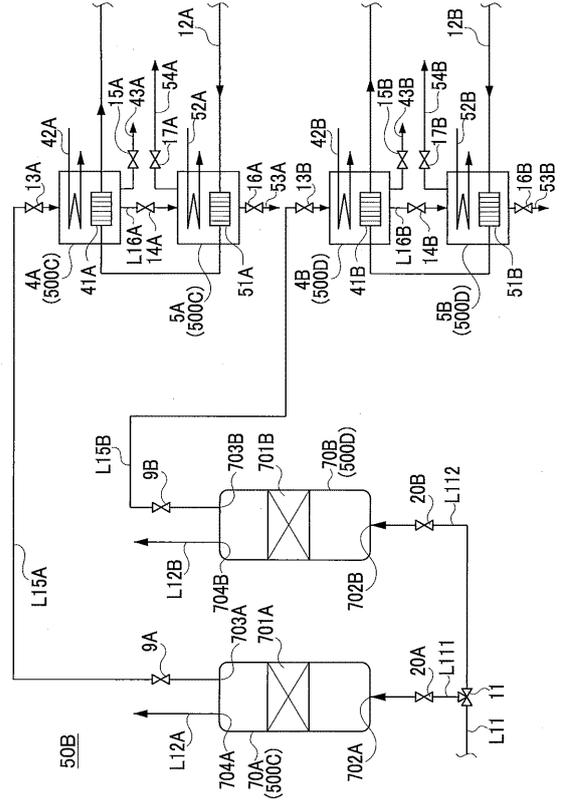
しかし、図 1 3 および図 1 4 に示す二酸化炭素昇華器 5 を用いることとすれば、必ずしも 2 台用いる必要はない。なぜならば、上記の通り、二酸化炭素昇華器 5 は、ドライアイス 9 0 回収の際に昇華室 5 5 の温度変動幅を小さくすることが可能であるため、ドライ

50

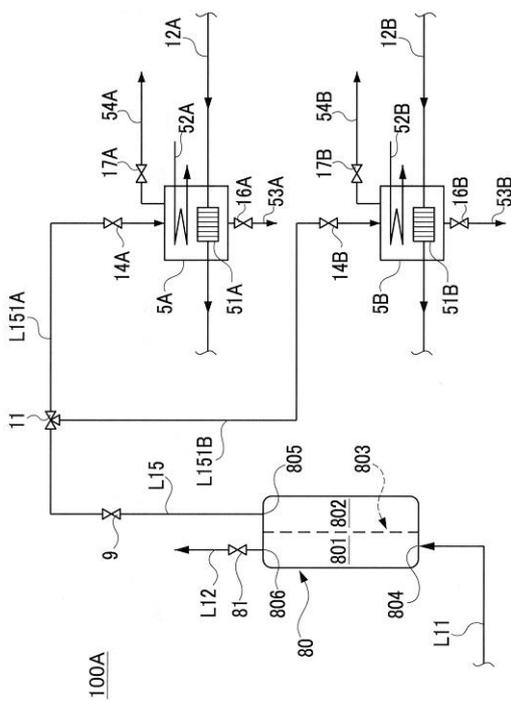
【 図 3 】



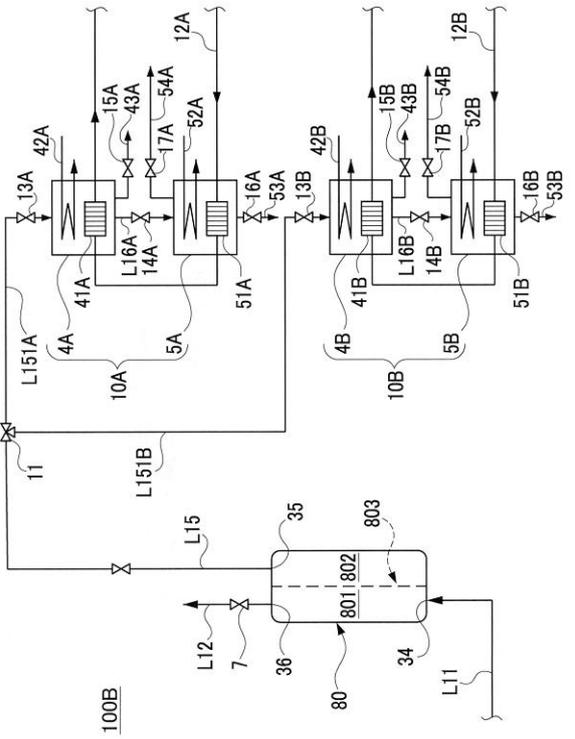
【 図 4 】



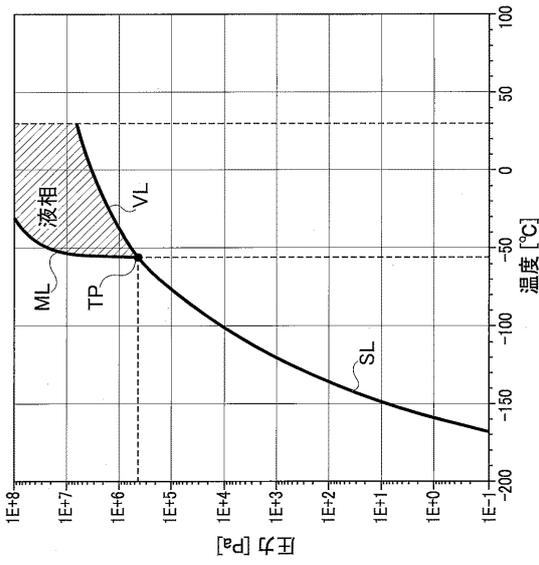
【 図 5 】



【 図 6 】



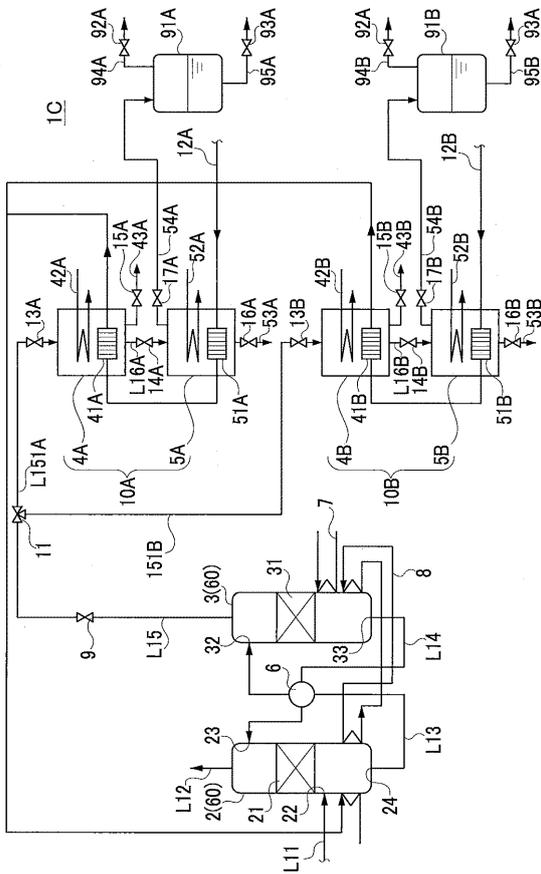
【 図 7 】



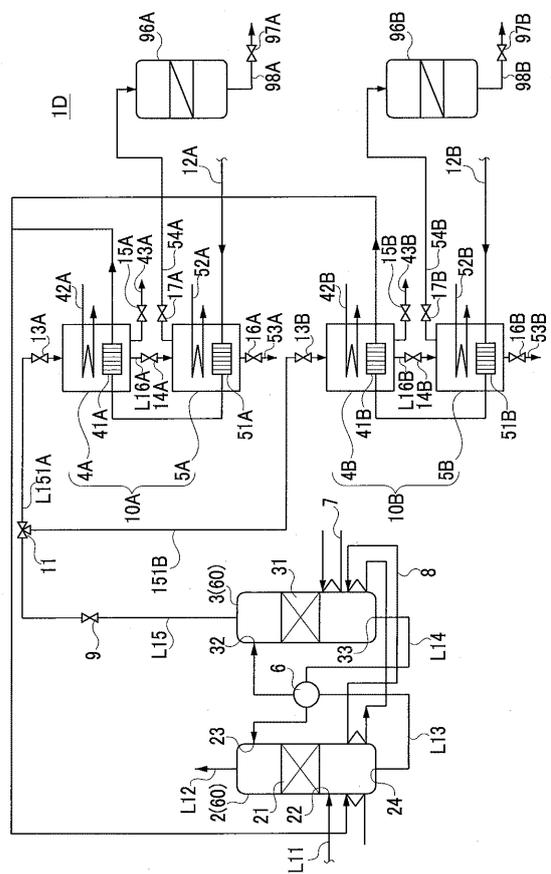
【 図 8 】

体積比	回収可能な液体炭素の 質量割合	酸化した二酸化炭素の 質量割合
0.12	0.938	0.062
0.15	0.951	0.049
0.18	0.961	0.039
0.21	0.967	0.033
0.24	0.972	0.028
0.27	0.976	0.024
0.3	0.979	0.021

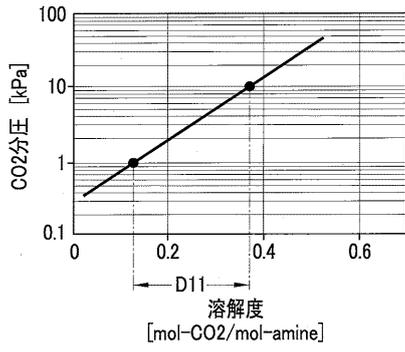
【 図 9 】



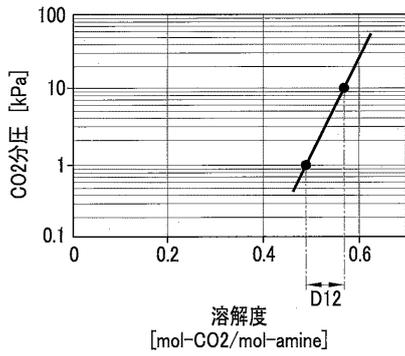
【 図 10 】



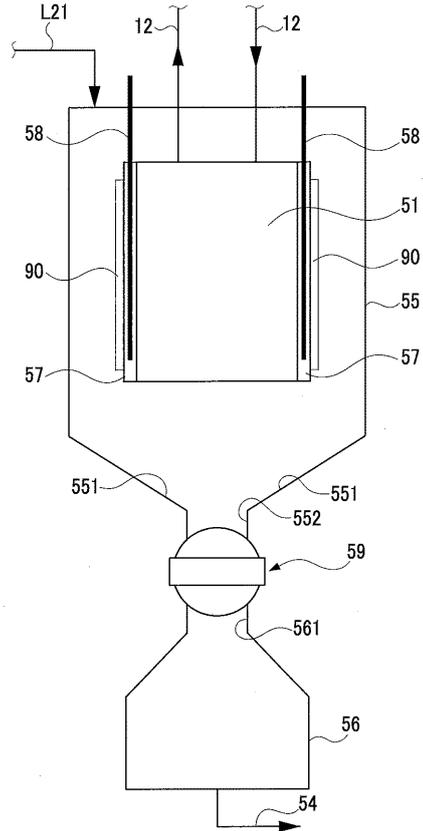
【 図 1 1 】



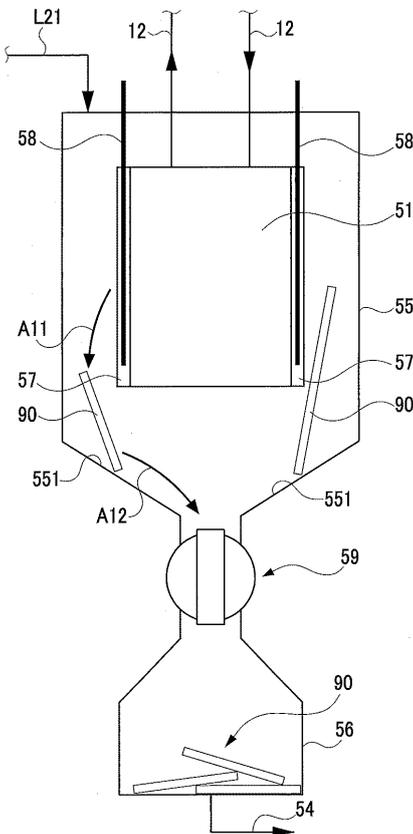
【 図 1 2 】



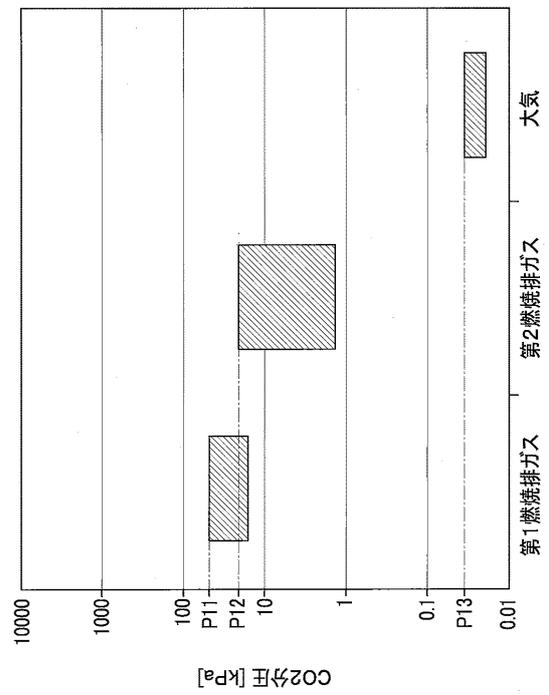
【 図 1 3 】



【 図 1 4 】



【 図 1 5 】



フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I
B 0 1 D	53/78 (2006.01)	B 0 1 D 53/78
B 0 1 D	53/82 (2006.01)	B 0 1 D 53/82
B 0 1 D	53/74 (2006.01)	B 0 1 D 53/74
C 0 1 B	32/50 (2017.01)	C 0 1 B 32/50
C 0 1 B	32/55 (2017.01)	C 0 1 B 32/55

(72)発明者 則永 行庸
愛知県名古屋市千種区不老町1番 東海国立大学機構内

(72)発明者 山下 博史
愛知県名古屋市千種区不老町1番 東海国立大学機構内

(72)発明者 山口 毅
愛知県名古屋市千種区不老町1番 東海国立大学機構内

審査官 松本 要

(56)参考文献 特開2014-004578(JP,A)
国際公開第2019/240028(WO,A1)
特表2004-532170(JP,A)
特開2011-190117(JP,A)
特表2013-501609(JP,A)
特表2009-520595(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B 0 1 D	1 / 0 0 - 8 / 0 0
B 0 1 D	5 3 / 0 0 - 5 3 / 9 6
C 0 1 B	3 2 / 0 0 - 3 2 / 9 9 1