

論文・解説

16

車載 CO₂ 回収技術のシステム設計と実験検証

System Design and Experimental Verification of On-Board CO₂ Capture Technology

松田 啓嗣^{*1} 山本 亮^{*2} 堀越 政寛^{*3} 乃生 芳尚^{*4}
Hirotsugu Matsuda Ryo Yamamoto Masahiro Horikoshi Yoshihisa Nou
崎間 俊明^{*5} 内田 健司^{*6} 原田 雄司^{*7}
Toshiaki Sakima Kenji Uchida Yuji Harada

要約

カーボンニュートラル達成に向けた技術の一つとして、エンジン燃焼後の排気ガスから CO₂ を回収する技術を検討している。乗用車への搭載を見据えた CO₂ 回収システムを用いて、CO₂ 吸着脱離が連続的に繰り返し可能であると示すことを目的とし、システム検討及び実験検証を実施した。本取り組みでは、吸着剤を充填した2つの吸着器を使用して、1つの吸着器で CO₂ を吸着させながら、もう1つの吸着器において減圧により CO₂ を離脱させるというコンセプト「圧カスイング法」を採用した。このシステムは、各吸着器につながる排気ガス経路を弁操作により切り替えながら運転することで、CO₂ 吸着脱離の繰り返しを可能とするものである。このコンセプトをベースに、一次元流体解析を用いて吸着器の仕様や制御ロジックを検討し、実験検証を行った。実験は、排気ガス流量及び温度を一定としたケース、WLTC モード走行を想定したケースで行った。その結果、2つの吸着器を用いた圧カスイング法により CO₂ 吸着脱離が連続的に可能であること、システム要件の抽出が可能なレベルの精度で計算モデルが CO₂ 吸着挙動を再現できること、エンジンを暖気した上での WLTC モード走行において約 50% の CO₂ を回収できることを確認できた。

Abstract

As one of the technologies to achieve carbon neutrality, the capture of CO₂ from automobile exhaust gas has been studied. With the aim of demonstrating that a CO₂ capture system, intended for installation in passenger cars, can continuously repeat CO₂ absorption and desorption, we conducted system evaluation and experimental validation. The outline of the system is that by using two adsorption beds, CO₂ is adsorbed in one bed while it is desorbed by depressurization in the other bed (Pressure Swing Adsorption). Repetition of CO₂ absorption and desorption is made possible by switching between the two beds through valve operation. Based on this concept, the specification of the adsorption bed and control logic were studied using a 1D-CFD tool, and an experimental verification was conducted. The experimental conditions included a test with a constant exhaust gas flow rate and temperature, as well as another test simulating WLTC mode driving. As a result, it was shown that a CO₂ capture system with two adsorption beds can continuously repeat CO₂ absorption and desorption, that the calculation model can reproduce the behavior of CO₂ adsorption with sufficient accuracy to extract system requirements, and that about 50% of CO₂ can be captured during WLTC mode driving with the engine warmed up.

Key words : Heat engine, Greenhouse gas, CO₂ separation and capture system

1. まえがき

カーボンニュートラル達成に向けマツダでは、地域ごとの電源事情などに応じてパワーユニットの展開を行う、

マルチソリューションのアプローチを採用している。再生可能エネルギーを用いた電動車や再生可能燃料を用いた内燃機関車が技術の候補として挙げられるが、確実なカーボンニュートラルの達成とその先のカーボンネガ

*1～7 技術研究所
Technical Research Center

タイプを見据えると、これらの技術で削減しきれないCO₂をオフセットする技術が重要である⁽¹⁾。その一つとして、エンジン燃焼後の排気ガスからCO₂を回収する技術が近年着目されている。その手法としては、排気ガスを大気へ放出した後に大気からCO₂を回収する手法(Direct Air Capture)と、排気ガスから直接CO₂を回収する手法が考えられるが、前者はCO₂の濃度が400ppm程度であるのに対し、後者は15%程度と、より高濃度のCO₂を対象とするため、装置を小型化可能であり、エネルギー消費の面でも効率的にCO₂を回収できる。回収したCO₂は車上で一時的に貯蔵する必要がある。限られた空間においてより多くのCO₂を一時貯蔵することを考えると、排気ガスからCO₂を分離し純度を高めた上で一時貯蔵することが有効であるため、排気ガス中のCO₂を連続的に分離する技術が必要となる。CO₂の分離手法としては、吸収法、吸着法、膜分離法などが挙げられるが、本研究においては必要エネルギーや小型化の観点から吸着法を用いた。吸着法による連続的なCO₂分離のためには、分離部を2つ以上設けた上でCO₂の吸着脱離を繰り返し行うことが必要となる。車載でのCO₂分離技術に関する研究は近年注目されているが⁽²⁾⁻⁽⁵⁾、まだ実例は乏しく、特に乗用車を想定したサイズで、CO₂吸着脱離の繰り返しによるCO₂回収が可能であることを示したものはほぼない。そのため、CO₂回収率のポテンシャルもまた不明確である。そこで本研究においては、CO₂吸着脱離が連続的に繰り返し可能であることの検証とCO₂回収率の確認を目的として、モデルベースでのシステム検討、及び実験検証を実施した。またシステム検討にあたって使用した吸着速度モデル⁽⁶⁾について、実用を見据えた環境(スケールアップ、脱離からの再度吸着、ガス流量の時間変化)に対する適応性も実験検証において確認した。

2. システム設計

2.1 システム構想

吸着脱離を繰り返し行う手法としては温度により平衡吸着量が異なるという特徴を活用した温度スイング法(Temperature Swing Adsorption, TSA)や、吸着ガスの分圧により平衡吸着量が異なるという特徴を活用した圧力スイング法(Pressure Swing Adsorption, PSA)などがある。TSAの実現においては、CO₂を吸着する機能をもつ部品(以降、吸着器)に温度制御機能を付与することが求められ、熱媒体流路をもつ吸着器構造にする必要があるため、設計が複雑化する。一方で本研究においては、CO₂吸着脱離が連続的に繰り返し可能であることを示す、という点を目的に据えていることから、吸着器構造の簡素化を重視し、PSAを採用した。吸着器にはCO₂吸着剤を充填しCO₂を吸着分離する。本研究においては、連続的なCO₂吸着脱離の可能性を早期に明らかにすることを重視したため、一般に流通しており、CO₂吸着特性が明

らかで、かつPSAに適したCO₂吸着剤を使用した。この観点から物理吸着に着目し、その代表としてゼオライト13X(東ソー製F-9[球状]粒子径:2.36-4.75mm)を使用した。ゼオライト13Xは、低温でより多くのCO₂を吸着可能で、またCO₂に対してH₂Oを優先的に吸着するという特徴をもつため、これらの特徴に対応したシステムとする必要がある。本研究にて検討したシステムの概要をFig.1に示す。排気ガスを常温まで冷却し、凝縮水除去によりガス中のH₂O量を低減した上で吸着器へ流入させることで、効率的にCO₂を吸着させる。同時に、CO₂を脱離させる吸着器を別途設け、各吸着器につながる排気ガス経路を弁操作により切り替えながら運転することで、CO₂吸着脱離を繰り返し可能にする。脱離のための減圧には真空ポンプを用いる。本研究において検討した制御コンセプトをFig.2に示す。「所定のCO₂脱離量が得られたタイミングで切り替える」という方針で、吸着量の代用指標として吸着器圧力をモニタリングしながら、所定の値に達した段階で経路切り替えを行うことを考えた(Fig.2における「Threshold Value」が「所定の値」に相当)。

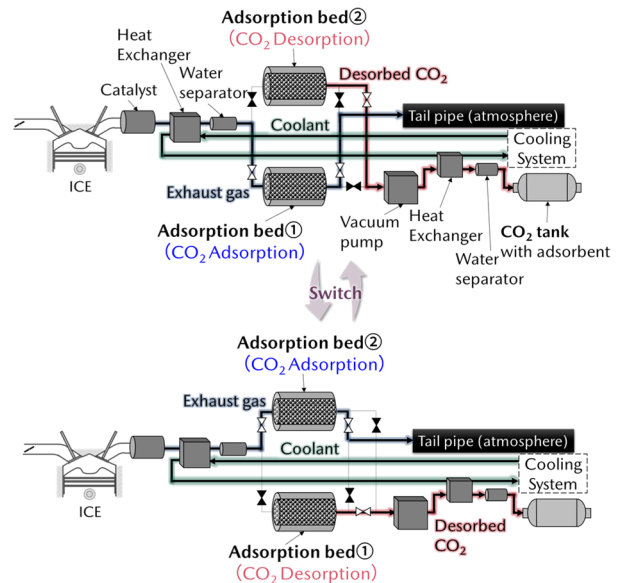


Fig. 1 Diagram of the System Concept

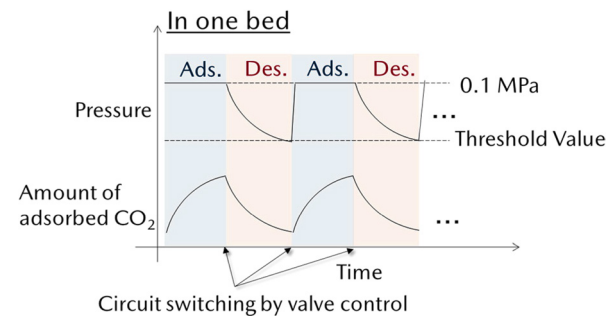


Fig. 2 Control Image Diagram

ゼオライト 13X の「CO₂ に対して H₂O を優先的に吸着する」という特徴は、脱離ガスに H₂O が混在することにつながり、CO₂ の一時貯蔵における CO₂ 純度の低下、という問題が生じる。しかし本システムは、吸着した CO₂ を減圧脱離させる際、理想的には真空ポンプ排気側のガスは N₂ の存在しない CO₂ 及び H₂O のみの環境であり、これを常温に冷却することで飽和蒸気圧の低い H₂O が優先的に凝縮し、気液分離器での除去が可能となる。この特徴により、別途除湿層を設けることなく、一時貯蔵における CO₂ 純度を高く保てる可能性がある。この概念を Fig. 3 に示す (値は一例)。

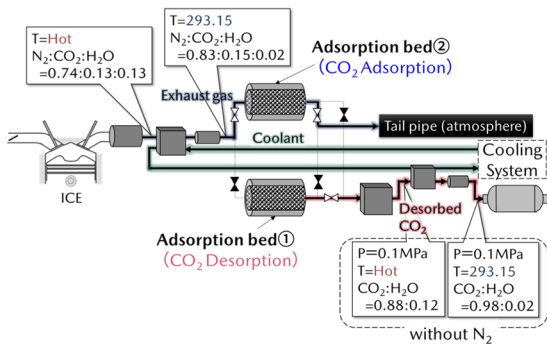


Fig. 3 Mechanism of Operation without Dehumidification

2.2 モデルベース検討手法

主要な機能部品である吸着器の容積、及び排気ガス経路切り替え制御の閾値となる圧力値については、熱や流体輸送の過渡状態を考慮可能な一次元流体解析ツール GT-SUITE により検討を行った。吸着器内の解析におけるサブモデルとして、社内で構築した条件変化に対応可能な吸着速度モデル⁽⁶⁾、熱伝達モデル⁽⁷⁾、及び圧力損失モデル⁽⁸⁾などを実装した。真空ポンプ前後の流体挙動については、排気速度特性を計算モデルに入力することで表現した。Fig. 1 の水分離器より後流の、冷却システムを除く部分を計算領域とした。

本検討においては、一定流量、温度のガスを流入境界へ設定した条件で、減圧中の吸着器圧力が所定値を下回ったタイミングで経路切り替えを実施する。この制御下において、流入 CO₂ 量に対する吸着器出口の CO₂ 量から CO₂ 回収率を算出し、ガス流量に対する CO₂ 回収率向上の要件検討を行った。ガス組成はレギュラーガソリンを理論空燃比で完全燃焼させ、1 気圧で 293.15K まで冷却、凝縮水を除去した際の組成とした。

2.3 検討結果

Fig. 4 に、吸着器の容積要件について検討した結果を示す。円筒形状の径を固定し、長さの調整で容積を変更した。Fig. 4 より、0.015m³ から CO₂ 回収率が頭打ちになっていることがわかる。吸着器の容積を大きくすれば

吸着剤の量も増加し、CO₂ 吸着可能総量の増加、すなわち吸着可能時間の拡大へつなげることができる。一方、吸着している CO₂ 量が増加することで脱離に要する時間も長期化することになり、これらのバランスにより CO₂ 回収率が決定される。ここで、吸着器容積と吸着可能時間はおおむね比例関係にあるのに対し、脱離時には吸着器の前後の配管を減圧する時間も必要になることから、ある容積までは回収率が上昇し、のちに頭打ちになる結果となったと考えられる。車載性を見据えた場合には小型であることが要求されるという点も踏まえ、約 15L 程度が望ましいという結果が読み取れる。Fig. 4 の結果と車両床下への搭載を考慮し、本研究における吸着器の諸元は Table 1 に示すものとした。

Fig. 5 に、排気ガス経路の切り替えを行う吸着器内圧力の閾値について検討した結果を示す。低圧まで減圧することで CO₂、H₂O の脱離量を稼げ、再度吸着が可能な容量を増加させることが可能な一方で、低圧域では減圧に時間を要することから、吸着器容積と同じく吸着可能容量の増加と脱離に必要な時間の増加のバランスで CO₂ の回収率が決まる。これを踏まえ Fig. 5 を見ると、約 1~1.5kPa が適切な設定であるということが分かる。この結果より、切り替えの閾値を 1kPa とすることとした。

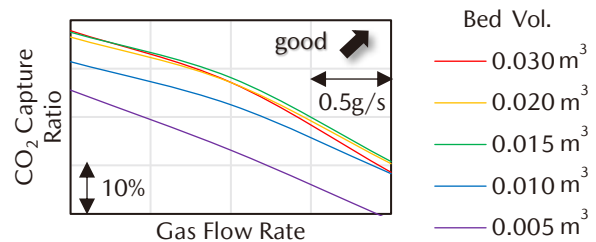


Fig. 4 Relationship between Adsorption Bed Volume and CO₂ Capture Ratio

Table 1 Specifications of Adsorption Beds

Inside Volume	m ³	0.011
Inside Diameter	mm	133.8
Length	mm	796

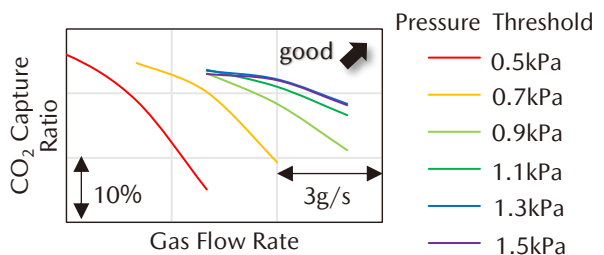


Fig. 5 Relationship between Pressure Threshold and CO₂ Capture Ratio

3. 連続吸着脱離機能検証及び CO₂ 回収率確認の手法

3.1 装置基本構成

実験装置の構成を Fig. 6 に、構成部品の主要諸元を Table 2 に示す。本研究においては、まずは連続吸着脱離機能と CO₂ 回収率を確認するという目的から、真空ポンプ通過後のガスについては貯蔵をせずに外気へ排気することとした。冷却システムには市販のチラー（オリオン機械製 RKE2200C-V）を使用し、冷媒は水とした。また、真空ポンプについても市販品（櫻山工業製 NeoDry300E）を使用している。流入ガスの生成には、主に実際の使用環境におけるガス条件（流量、温度、組成など）の模擬しやすさの観点から、実車をシャシーダイナモで走行させ、その排気ガスをテールパイプからサンプリングし CO₂ 回収システムへ流入させる手法を採用した。使用した車両のエンジン諸元及び燃料を Table 3 に示す。CO₂ 回収率の算出のため、両吸着器出口の合流配管部に非分散形赤外線吸収方式（NDIR）高速ガス分析計（Cambustion 製 NDIR500）を設置し、ガス中における CO₂ 濃度を計測した。流入 CO₂ 濃度は燃料組成と当量比から算出した。また、低圧対応の圧力計（長野計器製 GC51）により各吸着器の入口（ガス流入側）の圧力も計測した。

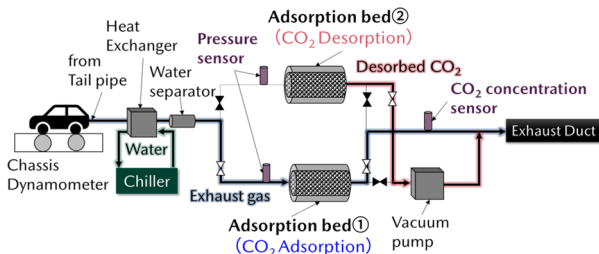


Fig. 6 Diagram of the Experimental Setup

Table 2 Specifications of Components

Vacuum Pump	Ultimate Pressure (Ideal)	Pa	0.3
	Max Pumping Speed	m ³ /s	0.083
Chiller	Cooling Capacity	kW	9.6

Table 3 Specifications of the Engine

Engine Type	—	DOHC 16-Valve 4-Cylinder
Bore×Stroke	mm	89×100
Compression Ratio	—	13.0 : 1
Fuel	—	Unleaded Regular Gasoline

3.2 検証条件

本研究では、エンジンの回転速度、負荷をおおむね一定に固定した実験（以降、定常実験）、及び WLTC モー

ド走行を模擬した実験を実施した。定常実験は、車載を想定したスケールにおいて CO₂ 吸着脱離が繰り返し可能であること、及びモデルにてその挙動を再現できることを確認する目的で実施した。WLTC モード走行模擬の実験は実使用環境における CO₂ 回収ポテンシャルの確認、及び排気ガス流量が変化する場合におけるモデル検証を目的として実施した。

定常実験の条件を Table 4 に示す。エンジンの回転数、負荷は常用域を考慮し設定した。初回の経路切り替えタイミングは、吸着開始から吸着平衡に近い範囲までの吸着挙動を確認するため、流入 CO₂ 濃度に対する出口 CO₂ 濃度の比が 1.03 になるタイミングとした。それ以降の切り替えタイミングは、2.3 節の結果に基づき脱離行程中の吸着器入口圧力が 1kPa 以下となったタイミングとした。

Table 4 Test Conditions for Steady-State Tests

Engine Speed	min ⁻¹	1470
BMEP	kPa	330
Excess Air Ratio	—	1

WLTC モード走行模擬実験の経路切り替えは、初回は出口 CO₂ 濃度が 1% となったタイミング、それ以降については脱離行程中の吸着器の圧力が 1kPa 以下となったタイミングにて行った。なお、本研究では実験装置の都合により、供試エンジンの冷却水温が 363.15K になるまで暖気した上でモード走行、及び CO₂ 回収システムへの排気ガス流入を開始した。

両実験とも、前処理として吸着器周りに設置したリボンヒーターにより吸着器を加熱した上で約 4 時間真空引きを行っている。この際の到達圧力は約 0.3kPa、温度は装置都合による分布があるものの吸着器内の平均で約 353.15K であった。また、両実験ともチラーの吐出設定温度は 293.15K、流量は約 21L とした。WLTC モード走行模擬実験では、終盤の Extra-High フェーズの一部でチラー及び熱交換器の能力が不足し熱交換器出口のガス温度が数 K 上昇したが、おおむね吐出設定温度どおり 293.15K に排気ガスを冷却することができた。

実験との対比計算では、定常実験及び WLTC モード走行模擬実験ともに、実測のガス流量、及び熱交換器出口の温度を入口境界条件として設定した。初期条件として、吸着剤に H₂O が吸着している状態を模擬している。吸着量は、前処理条件である圧力 0.3kPa、温度 353.15K 時の平衡吸着量を推定し、吸着器内一律の値として設定した。

4. 検証結果

4.1 定常実験

Fig. 7 に実験及び計算における吸着器出口側合流部の

CO₂ 濃度と吸着器入口における圧力の時間履歴を示す。計算における経路切り替えタイミングは、実験における切り替えタイミングと一致するよう設定している。Fig. 7 の実験結果から、全体を通して流入 CO₂ 濃度に対して出口 CO₂ 濃度が低い値を示しており、経路切り替え直後においては CO₂ 濃度が数%まで減少していることから、減圧により CO₂ が脱離し、再度吸着可能な状態へ再生できていることが確認できる。この結果から、2つの吸着器と真空ポンプを用いるシステムにより CO₂ 吸着脱離が繰り返し可能であるといえる。

Fig. 7 の CO₂ 濃度履歴から、実験結果の挙動を計算によりおおむねとらえることができている。つまり、社内で構築した吸着速度モデル⁽⁶⁾を用いることで、車載スケールにおいても CO₂ 吸着挙動を予測可能であるといえる。CO₂ 濃度が上昇していく振る舞いには若干の差異があるが、計算は吸着器内の解析において一次元的な流れを前提としているためと考えられる。つまり、実環境における流動、吸着剤粒子の充填状況などについての径方向の偏り、前処理時の温度分布を起因とした前処理後の H₂O 吸着量分布、これらが差異の要因であると推定している。本研究で使用した 1D-CFD ツールに加えて、三次元解析なども活用しながら現象解明を行い、それを次元縮退したモデルとして 1D-CFD に反映することにより更なる精度向上が期待できる。

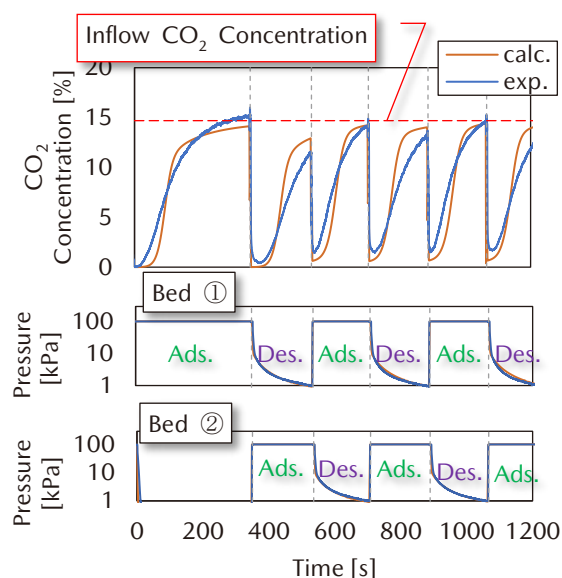


Fig. 7 Time History of CO₂ Concentration at the Outlet of the Adsorption Beds and Pressure in Front of the Adsorption Beds

4.2 WLTC モード走行模擬実験

実使用環境における CO₂ 回収ポテンシャルの確認とモデルの対応範囲確認のために WLTC モード走行模擬実験を実施した。Fig. 8 に、実験の流入ガス流量、実験及び計算の、瞬時の CO₂ 回収率及びそれぞれの吸着器入口に

おける圧力の時間履歴を示す。また、点線は経路切り替えのタイミングを示している。瞬時の CO₂ 回収率は、その時刻の吸着器出口側合流部における CO₂ 質量流量から外気へ排出されなかった (=回収できた) CO₂ 質量流量を算出し、これを流入 CO₂ 質量流量で除したものと定義した (式 1)。吸着器内及び前後の配管における滞留時間は無視している。

$$CR_{CO_2} = \frac{q_{CO_2_in} - q_{CO_2_out}}{q_{CO_2_in}} \times 100 \quad (1)$$

CR_{CO_2} は瞬時の CO₂ 回収率、 $q_{CO_2_in}$ は流入 CO₂ 質量流量、 $q_{CO_2_out}$ は吸着器出口側合流部の CO₂ 質量流量を示す。

Fig. 8 の実験結果から、WLTC モード走行においても CO₂ 吸着脱離が繰り返し行っているといえる。Fig. 8 の結果を走行フェーズごとに CO₂ 質量流量を時間積分し、トータルの CO₂ 回収率を算出した結果を Fig. 9 に示す。Fig. 9 に示す実験結果から、WLTC モードトータルでも約 50% CO₂ を回収することが可能であり、特に Low フェーズにおいては約 90% という極めて高い CO₂ 回収率を達成できている。

High ~ Extra-High フェーズなどエンジン負荷が高く排気ガス流量が多い領域においては、吸着容量に余裕があると推測できる経路切り替え直後含めて比較的恒常的に CO₂ 回収率が低くなっている。これは、仮に吸着容量に余裕がある場合でも、細孔内への侵入速度に対してガス流量が多い場合には吸着サイトへの接触機会が減少し、一定量の CO₂ は吸着されることなく吸着器出口に流出するためであると考えられる。一方、Low, Medium フェーズにおける挙動を見ると、経路切り替え直前に排気ガスが吸着器へ多量に流入したタイミングで回収率が大きく低下している。これを踏まえると、本研究においては圧力のみを経路切り替えタイミングを決める制御指標としたが、例えばエンジン出力などを制御指標として加え、脱離後の吸着器へ多量の排気ガスを流す制御コンセプトとすることで、実用域における CO₂ 回収率の更なる向上が期待できる。

Fig. 8, 9 において計算結果と実験結果を比較すると、計算において CO₂ 回収率が低く出ているものの、おおむね実験結果を計算で再現できている。この結果から、排気ガス流量が過渡的に変化する条件においても、計算モデルによりシステムの要件抽出が可能なレベルの精度で CO₂ 吸着挙動を予測できるといえる。計算と実験の差異は、Fig. 8 の傾向 (切り替え直前に計算が CO₂ 回収率を過少評価する) が定常実験と同様であることから、その要因も 4.1 節で述べたものと同様であると考えられる。

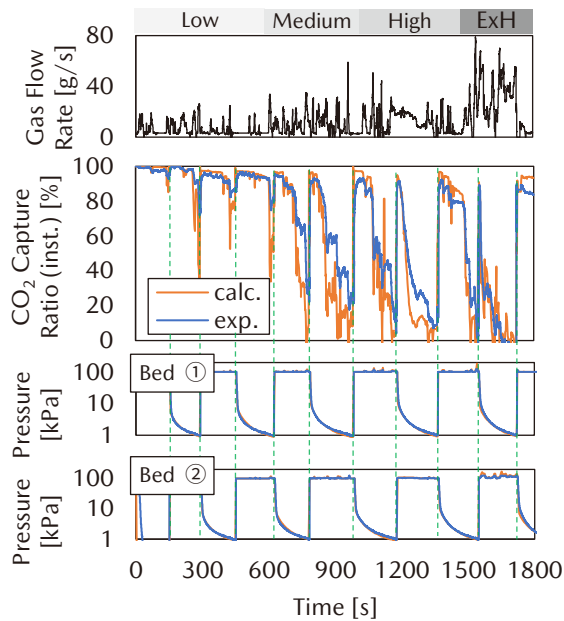


Fig. 8 Time History of Gas Flow Rate and Instantaneous CO₂ Capture Ratio and Pressure in Front of the Adsorption Beds

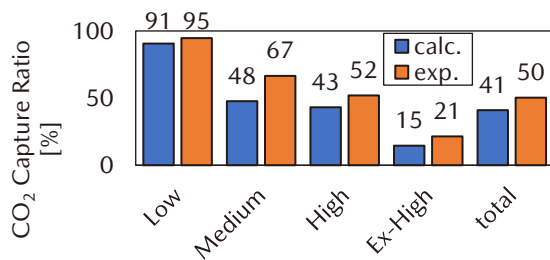


Fig. 9 CO₂ Capture Ratio on WLTC Mode

5. まとめ

本研究では、乗用車への搭載を見据えた CO₂ 回収システムを用いて、CO₂ 吸着脱離が連続的に繰り返し可能であることを示すため、システム検討及び実験検証を実施した。その結果を以下に示す。

- 2つの吸着器を用いた PSA による CO₂ 回収システムを用いて、CO₂ 吸着脱離が繰り返し可能であると実験により確認できた。
- モデルベースでの検討により、車載スケールにおける CO₂ 吸着脱離現象を定量的に予測可能である。
- エンジンを暖気した上での WLTC モード走行において、モードトータルで 50% 程度の CO₂ を回収できる。

本研究のシステム構成の車両への適用を見据えると、以下の課題がある。

- エネルギー消費の低減
- スペースのコンパクト化

本研究のシステムでは、真空ポンプの稼働エネルギー及びサイズが大きく、その低減が求められる。更に、吸着器内における圧力損失が他排気系部品と比較しても大

きく、エンジンの効率悪化を通してエネルギー消費につながるため、圧力損失低減策が必要となる。加えて、CO₂ を選択的に吸着できる吸着材料の適用により、現状では実質的に H₂O 吸着に使用している吸着剤分のスペースを削減できる。

今後、上記の課題を解決し、車載 CO₂ 回収システムの実現性を高めていく。

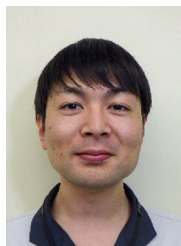
参考文献

- (1) T. Yamamoto et al.: Contributing to the Environment with Internal Combustion Engines towards Carbon Neutrality – Research for a New Direction of SKYACTIV Technology Cleaning the Air while You Drive, 45th International Vienna Motor Symposium (2024)
- (2) Christina D. Reynolds: Mobile Carbon Capture from Heavy-Duty Vehicles, Ph. D thesis of the Univ. Of Michigan (2019)
- (3) Sharma S. and Maréchal F.: Carbon Dioxide Capture From Internal Combustion Engine Exhaust Using Temperature Swing Adsorption, *Front. Energy Res.*, 7: 143 (2019)
- (4) T. Yanai and A. Yamazaki: Required Conditions for Regeneration of a CO₂ Separation and Capture System Using an Adsorption Method with Zeolite for Internal Combustion Engines, 2023 JSAE/SAE Powertrain Energy and Lubricants International Meeting, JSAE 20239114/SAE 2023-32-0127 (2023)
- (5) 野内忠則, 山崎誠志: 物理吸着法によるエンジン排気からの CO₂ 分離・回収—吸着材の表面物性および再生条件が CO₂ の吸着・脱離特性に及ぼす影響—, 自動車技術会論文集, Vol.55, No.5, pp.836-841 (2024)
- (6) 崎間俊明ら: 車載 CO₂ 回収技術の研究 (第 1 報)—CO₂ 吸着特性の計測とモデル構築—, 自動車技術会 秋季大会 予稿集 (2024)
- (7) N. Wakao et al.: EFFECT OF FLUID DISPERSION COEFFICIENTS ON PARTICLE-TO-FLUID HEAT TRANSFER COEFFICIENTS IN PACKED BEDS, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.34, pp. 325-336 (1979)
- (8) S. Ergun: FLUID FLOW THROUGH PACKED COLUMNS, *Chem. Eng. Prog.*, Vol.48, No.2, pp.89-94 (1952)

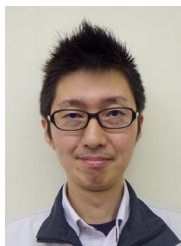
■著者■



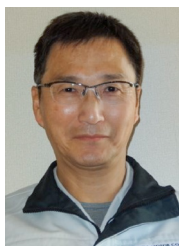
松田 啓嗣



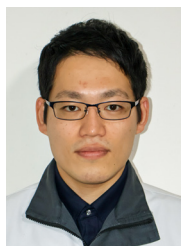
山本 亮



堀越 政寛



乃生 芳尚



崎間 俊明



内田 健司



原田 雄司