

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年11月23日(23.11.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/199598 A1

- (51) 国際特許分類:
B01J 20/06 (2006.01) *B01J 20/30* (2006.01)
B01D 53/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/013638
- (22) 国際出願日: 2017年3月31日(31.03.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-098200 2016年5月16日(16.05.2016) JP
特願 2016-098203 2016年5月16日(16.05.2016) JP
特願 2016-129064 2016年6月29日(29.06.2016) JP
特願 2016-167643 2016年8月30日(30.08.2016) JP
- (71) 出願人: 日立化成株式会社(HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 青 嶋 真 裕 (AOSHIMA Masahiro); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 吉成 保彦(YOSHINARI Yasuhiko); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 嶋崎 俊勝(SHIMAZAKI Toshikatsu); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 中村 英博(NAKAMURA Hidehiro); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 吉川 晃平(YOSHIKAWA Kouhei); 〒1018280 東京都千代田区丸の内一丁目6番6号 株式会社日立製作所内 Tokyo (JP). 小野寺 大剛(ONODERA Taigo); 〒1018280 東京都千代田区丸の内一丁目6番6号 株式会社日立製作所内 Tokyo (JP). 金枝 雅人(KANEEDA Masato); 〒1018280 東京都千代田区丸の内一丁目6番6号 株式会社日立製作所内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: ADSORBENT, METHOD FOR REMOVING CARBON DIOXIDE, DEVICE FOR REMOVING CARBON DIOXIDE, AND SYSTEM FOR REMOVING CARBON DIOXIDE

(54) 発明の名称: 吸着剤、二酸化炭素の除去方法、二酸化炭素除去装置、及び、二酸化炭素除去システム

(57) Abstract: This adsorbent, which is used in order to remove carbon dioxide from a gas to be processed including carbon dioxide, includes a cerium oxide. The lattice constant of the cerium oxide is at least 0.5415 nm.

(57) 要約: 二酸化炭素を含有する処理対象ガスから二酸化炭素を除去するために用いられる吸着剤であって、セリウム酸化物を含有し、前記セリウム酸化物の格子定数が0.5415 nm以上である、吸着剤。



WO 2017/199598 A1

明 細 書

発明の名称：

吸着剤、二酸化炭素の除去方法、二酸化炭素除去装置、及び、二酸化炭素除去システム

技術分野

[0001] 本発明は、吸着剤、二酸化炭素の除去方法、二酸化炭素除去装置、及び、二酸化炭素除去システムに関する。

背景技術

[0002] 近年、温室効果ガスの排出による地球温暖化が世界的な問題となっている。温室効果ガスとしては、二酸化炭素（ CO_2 ）、メタン（ CH_4 ）、フロン類（ CFCs 等）などが挙げられる。温室効果ガスの中でも二酸化炭素の影響が最も大きく、二酸化炭素（例えば、火力発電所、製鉄所等から排出される二酸化炭素）の除去方法の構築が求められている。

[0003] また、二酸化炭素は人体に影響を与えることが知られており、例えば、二酸化炭素を高濃度に含むガスを吸引した場合には、眠気、健康被害等を引き起こす。人の密度が高い空間（ビル、車輛等）においては、人の呼気により室内の二酸化炭素濃度（以下、場合により「 CO_2 濃度」という）が上昇しやすく、換気することで CO_2 濃度を調整する場合がある。

[0004] 室内空気と外気とを素早く換気するためには、ブロー等の送風装置を稼働させる必要がある。また、外から取り込む空気（外気）は温度及び湿度が調整されていないため、夏季には冷房を稼働させ、冬季には暖房を稼働させる必要がある。これらの理由から、室内の CO_2 濃度上昇は、空調に伴う消費電力の増加の要因となっている。

[0005] 換気による室内の二酸化炭素の減少量（ CO_2 減少量）は、下記式で表される。下記式において、左辺の CO_2 減少量が、人の呼気による CO_2 増加量と同等であれば CO_2 濃度を一定に保つことができる。

$$\text{CO}_2 \text{減少量} = (\text{室内のCO}_2 \text{濃度} - \text{外気のCO}_2 \text{濃度}) \times \text{換気量}$$

- [0006] しかしながら、近年では、外気の CO_2 濃度が増加しているため、室内との CO_2 濃度差が小さくなっている。そのため、 CO_2 濃度を調整するために必要な換気量も増加している。今後、外気の CO_2 濃度が更に増加した場合、換気による CO_2 濃度の調整では消費電力が増加すると考えられる。
- [0007] 前記課題は、外気との換気により生じるものである。そのため、換気以外の方法を用いて二酸化炭素を選択的に除去できれば、換気量を低減でき、結果として、空調に伴う消費電力を低減できる可能性がある。
- [0008] また、空気の存在する外気から遮蔽された空間（宇宙ステーション、潜水艇等）においては、外気と室内空気との換気が困難であるため、換気以外の方法により二酸化炭素を選択的に除去する必要がある。
- [0009] 前記課題の解決策としては、例えば、化学吸収法、物理吸収法、膜分離法、吸着分離法、深冷分離法等により二酸化炭素を除去する方法が挙げられる。例えば、 CO_2 吸着剤（以下、単に「吸着剤」という。）を用いて二酸化炭素を分離及び回収する方法（ CO_2 分離回収法）が挙げられる。吸着剤としては、例えば、ゼオライトが知られている（例えば、下記特許文献1参照）。

先行技術文献

特許文献

- [0010] 特許文献1：特開2000-140549号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0011] ところで、吸着剤を用いた二酸化炭素の除去方法に対しては、二酸化炭素の除去効率を向上させる観点から、吸着剤に対する二酸化炭素の吸着量を向上させることが求められている。
- [0012] 本発明は、前記事情に鑑みてなされたものであり、二酸化炭素の吸着量を向上させることが可能な吸着剤を提供することを目的とする。また、本発明は、前記吸着剤を用いた二酸化炭素の除去方法、二酸化炭素除去装置、及び、二酸化炭素除去システム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

- [0013] 本発明に係る吸着剤は、二酸化炭素を含有する処理対象ガスから二酸化炭素を除去するために用いられる吸着剤であって、セリウム酸化物を含有し、前記セリウム酸化物の格子定数が 0.5415 nm 以上である。
- [0014] 本発明に係る吸着剤によれば、吸着剤に対する二酸化炭素の吸着量を向上させることができる。このような吸着剤は、 CO_2 吸着性（二酸化炭素の吸着性、二酸化炭素の捕捉能）に優れている。
- [0015] ところで、ゼオライト等の従来の吸着剤を用いる方法では、処理対象ガスの CO_2 濃度が低い場合において、二酸化炭素の除去効率が低下する傾向がある。一方、本発明に係る吸着剤によれば、処理対象ガスの CO_2 濃度が低い場合において、吸着剤に対する二酸化炭素の吸着量を向上させることができる。このような吸着剤によれば、処理対象ガスの CO_2 濃度が低い場合において、効率的に二酸化炭素を除去することができる。
- [0016] 前記セリウム酸化物の含有量は、吸着剤の全質量基準で90質量%以上であることが好ましい。この場合、二酸化炭素の吸着量を更に向上させることができる。
- [0017] 本発明に係る二酸化炭素の除去方法は、上述した吸着剤を、二酸化炭素を含有する処理対象ガスに接触させて二酸化炭素を吸着剤に吸着させる工程を備える。本発明に係る二酸化炭素の除去方法によれば、吸着剤に対する二酸化炭素の吸着量を向上させることが可能であり、二酸化炭素の除去効率を向上させることができる。
- [0018] 前記処理対象ガスの CO_2 濃度は、 5000 ppm 以下であってもよく、 1000 ppm 以下であってもよい。
- [0019] 本発明に係る二酸化炭素除去装置は、上述した吸着剤を備える。本発明に係る二酸化炭素除去装置によれば、二酸化炭素の除去効率を向上させることができる。
- [0020] 本発明に係る二酸化炭素除去システムは、上述した吸着剤二酸化炭素除去装置を備える。本発明に係る二酸化炭素除去システムによれば、二酸化炭素

の除去効率を向上させることができる。

発明の効果

[0021] 本発明によれば、吸着剤に対する二酸化炭素の吸着量を向上させることができる。特に、本発明によれば、処理対象ガスの CO_2 濃度が低い場合において、吸着剤に対する二酸化炭素の吸着量を向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]図1は、 CO_2 吸着性を説明するための図である。

[図2]図2は、二酸化炭素除去システムの一実施形態を示す模式図である。

[図3]図3は、二酸化炭素除去システムの他の一実施形態を示す模式図である。

[図4]図4は、セリウム酸化物のXRDチャートを示す図である。

[図5]図5は、吸着脱離試験の測定結果を示す図である。

発明を実施するための形態

[0023] 本明細書において、「～」を用いて示された数値範囲は、「～」の前後に記載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を示す。本明細書中に段階的に記載されている数値範囲において、ある段階の数値範囲の上限値又は下限値は、他の段階の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、本明細書中に記載されている数値範囲において、その数値範囲の上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

[0024] 本明細書において、「工程」との語は、独立した工程だけではなく、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の所期の目的が達成されれば、本用語に含まれる。本明細書に例示する材料は、特に断らない限り、1種を単独で又は2種以上を組み合わせ用いることができる。本明細書において、組成物中の各成分の含有量は、組成物中に各成分に該当する物質が複数存在する場合、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数の物質の合計量を意味する。

[0025] 以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明する。ただし、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。

[0026] <吸着剤>

本実施形態に係る吸着剤（二酸化炭素捕捉剤）は、セリウム酸化物（酸化セリウム）を含有し、前記セリウム酸化物の格子定数が 0.5415 nm 以上である。本実施形態に係る吸着剤は、二酸化炭素を含有する処理対象ガス（処理の対象となるガス）から二酸化炭素を除去（例えば回収）するために用いられる。

[0027] 本発明者らは、鋭意検討の結果、 0.5415 nm 以上の格子定数を有するセリウム酸化物を含有する吸着剤が優れた CO_2 吸着性を有することを見いだした。

[0028] 本実施形態に係る吸着剤が優れた CO_2 吸着性を有する原因は明らかではないが、下記のとおりであると推察される。すなわち、セリウム酸化物の結晶の歪みが大きくなるほど、セリウム酸化物の格子定数は増加する。セリウム酸化物の結晶の歪みの原因としては、セリウム酸化物の酸素欠損等が考えられる。セリウム酸化物の表面において酸素欠損が生じると、二酸化炭素の酸素原子がセリウム酸化物の酸素欠損部位に捕捉され、セリウム酸化物と二酸化炭素とが強く結合しやすい。このようなセリウム酸化物は、二酸化炭素を吸着しやすいため、 CO_2 吸着性に優れると推察される。

[0029] 例えば、セリウム酸化物が CeO_2 を含む場合について、図1を用いて説明する。セリウム酸化物の格子定数が小さく、酸素欠損が生じていない場合、図1（a）に示すように、二酸化炭素の炭素原子が CeO_2 の一つの酸素原子に結合する。一方、セリウム酸化物の格子定数が大きく、酸素欠損が生じている場合、図1（b）に示すように、二酸化炭素の酸素原子がセリウム酸化物の酸素欠損部位に捕捉される。そして、二酸化炭素の炭素原子が複数の酸素原子に結合した状態で二酸化炭素がセリウム酸化物に吸着されるため、セリウム酸化物と二酸化炭素とが強く結合しやすいと推察される。

[0030] セリウム酸化物としては、 CeO_x （ $x = 1.5 \sim 2.0$ ）等が挙げられ、具体的には、 CeO_2 、 Ce_2O_3 等が挙げられる。

[0031] 吸着剤におけるセリウム酸化物の含有量は、吸着剤の全質量基準で、30

質量%以上であってもよく、40質量%以上であってもよく、45質量%以上であってもよく、50質量%以上であってもよく、70質量%以上であってもよく、90質量%以上であってもよい。吸着剤は、セリウム酸化物からなる態様（セリウム酸化物の含有量が吸着剤の全質量基準で実質的に100質量%である態様）であってもよい。セリウム酸化物の前記含有量が多いほど、二酸化炭素の吸着量を更に向上させることができる。セリウム酸化物の含有量は、例えば、吸着剤を得るための原料におけるセリウム化合物の含有量によって調整することができる。

[0032] 吸着剤に含有されるセリウム酸化物の格子定数は、二酸化炭素の吸着量が向上する観点から、 0.5415 nm 以上である。セリウム酸化物の格子定数は、例えば、 CeO_2 の格子定数である。セリウム酸化物の格子定数は、セリウム酸化物の結晶性の調整（例えば、原料の焼成温度の調整）、セリウム以外の希土類元素の添加等により調整することができる。

[0033] セリウム酸化物の格子定数は、例えば、走査範囲 $5^\circ \leq 2\theta \leq 100^\circ$ のX線回折測定により得られる回折ピークから求められる格子定数である。セリウム酸化物の格子定数は、例えば、株式会社リガク製の広角X線回折測定装置（商品名：RINT2500HL）を用いて、下記条件のX線回折測定により得ることができる。

X線源：Cu

X線出力： $50\text{ kV} - 250\text{ mA}$

光学系：モノクロメータ付き集中ビーム

走査軸： $2\theta / \theta$

走査モード：連続

走査範囲： $5^\circ \leq 2\theta \leq 100^\circ$

走査速度： $0.5^\circ / \text{分}$

サンプリング： 0.01°

[0034] セリウム酸化物の格子定数は、二酸化炭素の吸着量が更に向上する観点から、 0.5420 nm 以上が好ましく、 0.5422 nm 以上がより好まし

く、0.5425 nm以上が更に好ましく、0.5426 nm以上が特に好ましく、0.5427 nm以上が極めて好ましく、0.5428 nm以上が非常に好ましい。セリウム酸化物の格子定数は、0.5440 nm以下であってもよく、0.5435 nm以下であってもよく、0.5430 nm以下であってもよく、0.5429 nm以下であってもよい。

[0035] 吸着剤の形状としては、粉状、ペレット状、粒状、ハニカム状等が挙げられる。吸着剤の形状は、必要となる反応速度、圧力損失、吸着剤の吸着量、吸着剤に吸着されるガス（吸着ガス）の純度（CO₂純度）等を勘案して決定すればよい。

[0036] <吸着剤の製造方法>

本実施形態に係る吸着剤の製造方法は、例えば、セリウム化合物（セリウムの炭酸塩、セリウムの炭酸水素塩、セリウムのシュウ酸塩、セリウムの水酸化物等）を含む原料を焼成する焼成工程を備える。このような吸着剤の製造方法では、セリウム化合物を含む原料を焼成することにより、当該セリウム化合物を分解し、且つ、セリウムを酸化する。前記セリウム化合物は、ランタニド（セリウムを除く。ランタン、ネオジム、プラセオジウム等）、鉄、ナトリウムなどを含んでもよい。

[0037] セリウム化合物は、例えば、セリウムイオンと、炭酸イオン及び炭酸水素イオンからなる群より選ばれる少なくとも一種のイオンと、を含む化合物であってもよい。セリウムの炭酸塩は、例えば、セリウムイオンと、炭酸イオンと、を含む化合物である。セリウムの炭酸水素塩は、例えば、セリウムイオンと、炭酸水素イオンと、を含む化合物である。

[0038] セリウムの炭酸塩としては、炭酸セリウム、オキシ炭酸セリウム等が挙げられる。セリウムの炭酸水素塩としては、炭酸水素セリウム等が挙げられる。セリウム化合物は、二酸化炭素の吸着量が更に向上する観点から、炭酸セリウム、炭酸水素セリウム及びオキシ炭酸セリウムからなる群より選ばれる少なくとも一種の塩であってもよい。セリウムの炭酸塩は、炭酸水素アンモニウムと硝酸セリウムとを反応させることにより得られてもよい。

- [0039] 原料は、セリウム化合物以外の他の化合物を含んでいてもよい。他の化合物としては、例えば、ランタニド（セリウムを除く。ランタン、ネオジム、プラセオジム等）、鉄、ナトリウムなどを含む化合物が挙げられる。セリウム化合物は、公知の方法により作製することができる。また、セリウム化合物として、市販されている化合物を用いてもよい。
- [0040] セリウム化合物の含有量は、原料の全質量基準で、40質量%以上であってもよく、45質量%以上であってもよく、50質量%以上であってもよく、90質量%以上であってもよく、99質量%以上であってもよい。セリウム化合物を含む原料は、セリウム化合物からなる態様（セリウム化合物の含有量が原料の全質量基準で実質的に100質量%である態様）であってもよい。セリウム化合物の前記含有量が多いほど、二酸化炭素の吸着量を更に向上させることができる。
- [0041] 焼成工程における焼成温度は、セリウム化合物を分解できる温度であれば特に限定されない。焼成温度は、セリウム化合物の分解が進行しやすいことから吸着剤の製造時間を短縮できる観点から、150℃以上であってもよく、175℃以上であってもよく、200℃以上であってもよく、225℃以上であってもよい。焼成温度は、セリウム酸化物の焼結が起こりにくいことから吸着剤の比表面積が大きくなりやすい観点から、600℃以下であってもよく、500℃以下であってもよく、400℃以下であってもよく、350℃以下であってもよく、300℃以下であってもよい。これらの観点から、焼成温度は、150～600℃であってもよく、175～500℃であってもよく、150～400℃であってもよく、200～400℃であってもよく、200～350℃であってもよく、225～300℃であってもよい。
- [0042] 焼成工程における焼成時間は、例えば、10分以上であってもよい。焼成時間は、例えば、10時間以下であってもよく、3時間以下であってもよく、1時間以下であってもよい。
- [0043] 焼成工程は、一段階で行ってもよく、二段階以上の多段階で行ってもよい。

。なお、多段階の焼成を行う場合、少なくとも一つの段階が前記焼成温度及び／又は焼成時間であることが好ましい。焼成工程は、例えば、空気雰囲気下、酸素雰囲気下又は還元雰囲気下で行うことができる。

[0044] 焼成工程では、乾燥した原料を焼成してもよい。また、焼成工程では、原料を含む溶液（例えば、セリウム化合物が溶解した溶液）を加熱することにより、溶媒を除去すると共に原料を焼成してもよい。

[0045] 本実施形態に係る吸着剤の製造方法は、焼成前の原料を所定の形状（例えば、後述する吸着剤の形状）に成形する工程を備えていてもよく、焼成後の原料を所定の形状に成形する工程を備えていてもよい。

[0046] <二酸化炭素の除去方法>

本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法は、本実施形態に係る吸着剤を、二酸化炭素を含有する処理対象ガスに接触させて二酸化炭素を当該吸着剤に吸着させる吸着工程を備える。

[0047] 処理対象ガスにおける CO_2 濃度は、処理対象ガスの全体積基準で5000ppm以下（0.5体積%以下）であってもよい。本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法によれば、 CO_2 濃度が5000ppm以下である場合において、効率的に二酸化炭素を除去することができる。このような効果が奏される理由は、明らかでないが、以下の通りであると本発明者らは推察している。吸着工程では、二酸化炭素がセリウム酸化物の表面に物理吸着するのではなく、二酸化炭素がセリウム酸化物の表面と化学結合することにより二酸化炭素が吸着剤に吸着されると考えられる。この場合、本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法では、吸着剤への吸着における二酸化炭素の分圧依存性が小さく、処理対象ガスの CO_2 濃度が5000ppm以下であっても、効率的に二酸化炭素を除去することが可能であると推察される。

[0048] CO_2 濃度は、 CO_2 濃度が低い場合であっても効率的に二酸化炭素を除去する効果が確認されやすい観点から、処理対象ガスの全体積基準で、2000ppm以下であってもよく、1500ppm以下であってもよく、1000ppm以下であってもよく、800ppm以下であってもよい。 CO_2 濃度

は、二酸化炭素の除去量が多くなりやすい観点から、処理対象ガスの全体積基準で、100ppm以上であってもよく、200ppm以上であってもよく、400ppm以上であってもよい。これらの観点から、CO₂濃度は、処理対象ガスの全体積基準で、100～5000ppmであってもよく、100～2000ppmであってもよく、100～1500ppmであってもよく、100～1000ppmであってもよく、200～1000ppmであってもよく、400～1000ppmであってもよく、400～800ppmであってもよい。なお、労働安全衛生法の事務所衛生基準規則において室内のCO₂濃度は5000ppm以下に調整されるべきことが規定されている。また、CO₂濃度が1000ppmを超える場合には眠気を誘発することが知られており、建築物環境衛生管理基準においてCO₂濃度は1000ppm以下に調整されるべきことが規定されている。そのため、CO₂濃度が5000ppm又は1000ppmを超過しないように換気することでCO₂濃度を調整する場合がある。処理対象ガスにおけるCO₂濃度は、前記範囲に限られず、500～5000ppmであってもよく、750～5000ppmであってもよい。

[0049] 処理対象ガスは、二酸化炭素を含有するガスであれば特に限定されず、二酸化炭素以外のガス成分を含有していてもよい。二酸化炭素以外のガス成分としては、水（水蒸気、H₂O）、酸素（O₂）、窒素（N₂）、一酸化炭素（CO）、SO_x、NO_x、揮発性有機物（VOC）等が挙げられる。処理対象ガスの具体例としては、例えば、ビル、車輛等の室内における空気が挙げられる。吸着工程において、処理対象ガスが水、一酸化炭素、SO_x、NO_x、揮発性有機物等を含有する場合、これらのガス成分は吸着剤に吸着される場合がある。

[0050] ところで、ゼオライト等の従来の吸着剤では、処理対象ガスが水を含有する場合にCO₂吸着性が大幅に低下する傾向がある。そのため、従来の吸着剤を用いる方法において吸着剤のCO₂吸着性を向上させるためには、処理対象ガスを吸着剤に接触させる前に処理対象ガスから水分を取り除く除湿工程を

行う必要がある。除湿工程は、例えば、除湿装置を用いて行われるため、設備の増加及びエネルギー消費量の増加につながる。一方、本実施形態に係る吸着剤は、処理対象ガスが水を含有する場合であっても、従来の吸着剤と比較して優れた CO_2 吸着性を有する。そのため、本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法では、除湿工程が不要であり、処理対象ガスが水を含有する場合であっても効率的に二酸化炭素を除去することができる。

[0051] 処理対象ガスの露点は、 0°C 以上であってもよい。処理対象ガスの相対湿度は、 30% 以上であってもよく、 50% 以上であってもよく、 80% 以上であってもよい。

[0052] 吸着工程において処理対象ガスを吸着剤に接触させる際の吸着剤の温度 T_1 を調整することにより、二酸化炭素の吸着量を調整することができる。温度 T_1 が高いほど吸着剤の CO_2 吸着量が少なくなる傾向がある。温度 T_1 は、 $-20\sim 100^{\circ}\text{C}$ であってもよく、 $10\sim 40^{\circ}\text{C}$ であってもよい。

[0053] 吸着剤の温度 T_1 は、吸着剤を加熱又は冷却することにより調整されてもよく、加熱及び冷却を併用してもよい。また、処理対象ガスを加熱又は冷却することにより間接的に吸着剤の温度 T_1 を調整してもよい。吸着剤を加熱する方法としては、熱媒（例えば、加熱されたガス又は液体）を直接吸着剤に接触させる方法；伝熱管等に熱媒（例えば、加熱されたガス又は液体）を流通させ、伝熱面からの熱伝導により吸着剤を加熱する方法；電気的に発熱させた電気炉等により吸着剤を加熱する方法などが挙げられる。吸着剤を冷却する方法としては、冷媒（例えば、冷却されたガス又は液体）を直接吸着剤に接触させる方法；伝熱管等に冷媒（例えば、冷却されたガス又は液体）を流通させ、伝熱面からの熱伝導により冷却する方法などが挙げられる。

[0054] 吸着工程において、吸着剤の存在する雰囲気的全圧（例えば、吸着剤を含む容器内の全圧）を調整することにより、二酸化炭素の吸着量を調整することができる。全圧が高いほど吸着剤の CO_2 吸着量が多くなる傾向がある。全圧は、二酸化炭素の除去効率が更に向上する観点から、 1 気圧以上が好ましい。全圧は、省エネルギーの観点から、 10 気圧以下であってもよく、 2 気

圧以下であってもよく、1.3気圧以下であってもよい。全圧は、5気圧以上であってもよい。

[0055] 吸着剤の存在する雰囲気気的全圧は、加圧又は減圧することにより調整されてもよく、加圧及び減圧を併用してもよい。全圧を調整する方法としては、ポンプ、コンプレッサー等により機械的に圧力を調整する方法；吸着剤の周辺雰囲気気の圧力とは異なる圧力を有するガスを導入する方法などが挙げられる。

[0056] 本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法では、吸着剤をハニカム状の基材に担持して用いてもよく、吸着剤を容器に充填して用いてもよい。吸着剤の使用方法は、必要となる反応速度、圧力損失、吸着剤の吸着量、吸着剤に吸着されるガス（吸着ガス）の純度（CO₂純度）等を勘案して決定すればよい。

[0057] 吸着剤を容器に充填して用いる場合、吸着ガス中の二酸化炭素の純度を高める場合には、空隙率が小さいほど好ましい。この場合、空隙内に残留する二酸化炭素以外のガス量が少なくなるため、吸着ガス中の二酸化炭素の純度を高めることができる。一方、圧力損失を小さくする場合には、空隙率が大きいほど好ましい。

[0058] 本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法は、前記吸着工程後に、二酸化炭素を吸着剤から脱着（脱離）させる脱着工程を更に備えていてもよい。

[0059] 二酸化炭素を吸着剤から脱着させる方法としては、吸着量の温度依存性を利用する方法（温度スイング法。温度変化に伴う吸着剤の吸着量差を利用する方法）；吸着量の圧力依存性を利用する方法（圧力スイング法。圧力変化に伴う吸着材の吸着量差を利用する方法）等が挙げられ、これらの方法を併用してもよい（温度・圧力スイング法）。

[0060] 吸着量の温度依存性を利用する方法では、例えば、脱着工程における吸着剤の温度を吸着工程よりも高くする。吸着剤を加熱する方法としては、上述した吸着工程において吸着剤を加熱する方法と同様の方法；周辺の排熱を利用する方法等が挙げられる。加熱に要するエネルギーを抑える観点からは、

周辺の排熱を利用することが好ましい。

[0061] 吸着工程における吸着剤の温度 T_1 と、脱着工程における吸着剤の温度 T_2 との温度差($T_2 - T_1$)は、省エネルギーの観点から、 200°C 以下であってもよく、 100°C 以下であってもよく、 50°C 以下であってもよい。温度差($T_2 - T_1$)は、吸着剤に吸着した二酸化炭素を脱着しやすい観点から、 10°C 以上であってもよく、 20°C 以上であってもよく、 30°C 以上であってもよい。脱着工程における吸着剤の温度 T_2 は、例えば、 $40 \sim 300^{\circ}\text{C}$ であってもよく、 $50 \sim 200^{\circ}\text{C}$ であってもよく、 $80 \sim 120^{\circ}\text{C}$ であってもよい。

[0062] 吸着量の圧力依存性を利用する方法では、吸着剤の存在する雰囲気的全圧（例えば、吸着剤を含む容器内の全圧）が高いほど CO_2 吸着量が多くなることから、吸着工程の全圧よりも脱着工程の全圧が低圧となるように変化させることが好ましい。全圧は、加圧又は減圧することにより調整されてもよく、加圧及び減圧を併用してもよい。全圧を調整する方法としては、例えば、上述した吸着工程と同様の方法が挙げられる。脱着工程における全圧は、 CO_2 脱離量が多くなる観点から、周辺大気の大気圧（例えば1気圧）であってもよく、1気圧未満であってもよい。

[0063] 脱着工程により脱着して回収された二酸化炭素は、そのまま外気に排出してもよいが、二酸化炭素を利用する分野において再利用してもよい。例えば、温室栽培向けハウス等では、 CO_2 濃度を高めることで植物の成長が促進されることから、 CO_2 濃度を 1000 ppm レベルに高める場合があるため、回収された二酸化炭素を、 CO_2 濃度を高めることに再利用してもよい。

[0064] 吸着剤に SO_x 、 NO_x 、煤塵等が吸着した場合、吸着工程における吸着剤の CO_2 吸着性が低下する可能性があるため、処理対象ガスは SO_x 、 NO_x 、煤塵等を含有しないことが好ましい。処理対象ガスが SO_x 、 NO_x 、煤塵等を含有する場合（例えば、処理対象ガスが、石炭火力発電所等から排出される排ガスである場合）、本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法は、吸着剤の CO_2 吸着性を保持しやすい観点から、吸着工程の前に、処理対象ガ

スから SO_x 、 NO_x 、煤塵等の不純物を除去する不純物除去工程を更に備えることが好ましい。不純物除去工程では、吸着剤を加熱することにより、吸着剤に吸着した不純物を除去することができる。また、不純物除去工程は、脱硝装置、脱硫装置、脱塵装置等の除去装置を用いて行うことが可能であり、これらの装置の下流側において、処理対象ガスを吸着剤に接触させることができる。

[0065] 脱着工程後の吸着剤は、再度、吸着工程に用いることができる。本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法では、脱着工程後、吸着工程及び脱着工程を繰り返し行ってもよい。脱着工程において吸着剤を加熱した場合、上述の方法により吸着剤を冷却して吸着工程に用いてもよい。二酸化炭素を含有するガス（例えば、二酸化炭素を含有する処理対象ガス）を吸着剤に接触させることにより吸着剤を冷却してもよい。

[0066] 本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法は、 CO_2 濃度の管理が必要な密閉された空間において好適に実施することができる。 CO_2 濃度の管理が必要な空間としては、例えば、ビル；車輛；自動車；宇宙ステーション；潜水艇；食品又は化学製品の製造プラント等が挙げられる。本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法は、特に、 CO_2 濃度が5000ppm以下に制限される空間（例えば、ビル、車輛等の人の密度が高い空間）において好適に実施することができる。また、食品又は化学製品等の製造時において二酸化炭素が悪影響を与える可能性があることから、本実施形態に係る二酸化炭素の除去方法は、食品又は化学製品の製造プラント等において好適に実施することができる。

[0067] <二酸化炭素除去装置及び二酸化炭素除去システム>

本実施形態に係る二酸化炭素除去システムは、本実施形態に係る二酸化炭素除去装置を備える。例えば、本実施形態に係る二酸化炭素除去システムは、本実施形態に係る二酸化炭素除去装置と、当該二酸化炭素除去装置を統括的に制御するための制御手段と、を備える。本実施形態に係る二酸化炭素除去システム（空調システム等）は、本実施形態に係る二酸化炭素除去装置（

空調装置等)を複数備えていてもよい。本実施形態に係る二酸化炭素除去システムは、複数の二酸化炭素除去装置の運転を統括的に制御する制御部を備えていてもよい。本実施形態に係る二酸化炭素除去装置は、本実施形態に係る吸着剤を備えている。

[0068] 本実施形態に係る二酸化炭素除去システム及び二酸化炭素除去装置では、例えば、反応容器内に導入された処理対象ガスが、反応容器内に配置された吸着剤に接触することで、二酸化炭素が吸着剤に吸着する。本実施形態に係る二酸化炭素除去システム及び二酸化炭素除去装置は、空調対象空間における二酸化炭素濃度を下げるために用いられてもよく、プラント等から外気に排出されるガス中の二酸化炭素濃度を下げるために用いられてもよい。空調対象空間は、例えば、ビル；車輛；自動車；宇宙ステーション；潜水艇；食品又は化学製品の製造プラント等であってもよい。

[0069] 本実施形態に係る二酸化炭素除去装置は、空調装置であってもよい。本実施形態に係る空調装置は、二酸化炭素を含有する処理対象ガスを含む空調対象空間に用いられる空調装置である。本実施形態に係る空調装置は、空調対象空間に接続された流路を備え、処理対象ガスに含まれる二酸化炭素を除去する除去部（二酸化炭素除去部）が流路に配置されている。本実施形態に係る空調装置において、本実施形態に係る吸着剤が除去部に配置されており、吸着剤が処理対象ガスに接触して二酸化炭素が吸着剤に吸着する。本実施形態によれば、空調対象空間の処理対象ガスを吸着剤に接触させて二酸化炭素を吸着剤に吸着させる吸着工程を備える空調方法が提供される。なお、二酸化炭素を含有する処理対象ガスの詳細は、上述した二酸化炭素の除去方法における処理対象ガスと同様である。

[0070] 以下、図2及び図3を用いて、二酸化炭素除去システム及び二酸化炭素除去装置の例として、空調システム及び空調装置について説明する。

[0071] 図2に示すように、空調システム200は、空調装置100と、制御装置（制御部）110と、を備えている。空調装置100は、流路10と、排気ファン（排気手段）20と、濃度測定器（濃度測定部）30と、電気炉（温

度制御手段) 40と、コンプレッサー(圧力制御手段) 50と、を備えている。

[0072] 流路10は、二酸化炭素を含有する処理対象ガス(室内ガス)を含む空調対象空間Rに接続されている。流路10は、流路部10aと、流路部10bと、除去部(流路部。二酸化炭素除去部)10cと、流路部10dと、流路部(循環流路)10eと、流路部(排気流路)10fとを有しており、除去部10cは、流路10に配置されている。空調装置100は、反応容器として除去部10cを備えている。流路10には、除去部10cにおける処理対象ガスの流入の有無を調整するバルブ70aと、処理対象ガスの流れ方向を調整するバルブ70bとが配置されている。

[0073] 流路部10aの上流端は、空調対象空間Rに接続されており、流路部10aの下流端は、バルブ70aを介して流路部10bの上流端に接続されている。除去部10cの上流端は、流路部10bの下流端に接続されている。除去部10cの下流端は、流路部10dの上流端に接続されている。流路10における流路部10dより下流側は、流路部10e及び流路部10fに分岐している。流路部10dの下流端は、バルブ70bを介して流路部10eの上流端及び流路部10fの上流端に接続されている。流路部10eの下流端は、空調対象空間Rに接続されている。流路部10fの下流端は、外気に接続されている。

[0074] 除去部10cには、本実施形態に係る吸着剤である吸着剤80が配置されている。吸着剤80は、除去部10cの中央部に充填されている。除去部10cには、吸着剤80を介して2つの空間が形成されており、除去部10cは、上流側の空間S1と、吸着剤80が充填された中央部S2と、下流側の空間S3とを有している。空間S1は、流路部10a、10b及びバルブ70aを介して空調対象空間Rに接続されており、二酸化炭素を含有する処理対象ガスが空調対象空間Rから除去部10cの空間S1に供給される。除去部10cに供給された処理対象ガスは、中央部S2を経由して空間S1から空間S3へ移動した後、除去部10cから排出される。

- [0075] 空調対象空間 R から排出された処理対象ガスは、除去部 10c において二酸化炭素の少なくとも一部が除去される。二酸化炭素が除去された処理対象ガスは、バルブ 70b を調整することにより、空調対象空間 R に戻されてもよく、空調装置 100 の外部における外気へ排出されてもよい。例えば、空調対象空間 R から排出された処理対象ガスは、上流から下流にかけて、流路部 10a、流路部 10b、除去部 10c、流路部 10d 及び流路部 10e を経由して空調対象空間 R に流入することができる。また、空調対象空間 R から排出された処理対象ガスは、上流から下流にかけて、流路部 10a、流路部 10b、除去部 10c、流路部 10d 及び流路部 10f を経由して外気に排出されてもよい。
- [0076] 排気ファン 20 は、空調対象空間 R における処理対象ガスの排出位置に配置されている。排気ファン 20 は、処理対象ガスを空調対象空間 R から排出して除去部 10c へ供給する。
- [0077] 濃度測定器 30 は、空調対象空間 R の二酸化炭素濃度を測定する。濃度測定器 30 は、空調対象空間 R 内に配置されている。
- [0078] 電気炉 40 は、空調装置 100 の除去部 10c の外部に配置されており、吸着剤 80 の温度を昇温させることができる。コンプレッサー 50 は、空調装置 100 の除去部 10c に接続されており、除去部 10c 内の圧力を調整することができる。
- [0079] 制御装置 110 は、空調装置 100 の統括的な運転制御を行うことが可能であり、例えば、濃度測定器 30 で測定される二酸化炭素濃度に基づいて、除去部 10c における処理対象ガスの流入の有無を制御することができる。具体的には、呼気等により空調対象空間 R 内の二酸化炭素濃度が上昇して所定濃度に達したことが濃度測定器 30 により検出された場合、濃度測定器 30 から制御装置 110 に濃度情報が送信される。濃度情報を受信した制御装置 110 は、バルブ 70a を開放すると共に、除去部 10c から排出されるガスが流路部 10d 及び流路部 10e を介して空調対象空間 R に流入するように調整する。そして、制御装置 110 は、排気ファン 20 を稼働させて、

空調対象空間 R から処理対象ガスを除去部 10c へ供給する。さらに、制御装置 110 は、必要に応じて、電気炉 40 及び／又はコンプレッサー 50 を稼働させて、吸着剤 80 の温度、除去部 10c 内の圧力等を調整する。

[0080] 除去部 10c に供給された処理対象ガスが中央部 S2 を経由して空間 S1 から空間 S3 へ移動するに際して、処理対象ガスが吸着剤 80 に接触し、処理対象ガス中の二酸化炭素が吸着剤 80 に吸着する。これにより、処理対象ガスから二酸化炭素が除去される。この場合、二酸化炭素が除去されたガスは、流路部 10d 及び流路部 10e を介して空調対象空間 R に供給される。

[0081] 吸着剤 80 に吸着した二酸化炭素は、吸着剤 80 から脱着させることなく、吸着剤 80 に吸着した状態で回収されてもよく、吸着剤 80 から脱着させて回収してもよい。脱着工程においては、電気炉 40 及び／又はコンプレッサー 50 を稼働させて吸着剤 80 の温度、除去部 10c 内の圧力等を調整することにより、上述した温度スイング法、圧力スイング法等により、吸着剤 80 から二酸化炭素を脱着させることができる。この場合、例えば、バルブ 70b は、除去部 10c から排出されるガス（脱着した二酸化炭素を含有するガス）が流路部 10f を介して外気に排出されるように調整されており、必要に応じて、排出される二酸化炭素を回収することができる。

[0082] 図 3 に示すように、空調システム 210 は、第 1 の空調装置 100a と、第 2 の空調装置 100b と、制御装置（制御部）110 と、制御装置（制御部）120 と、を備えている。制御装置 120 は、第 1 の空調装置 100a 及び第 2 の空調装置 100b における上述の制御装置 110 を制御することにより、第 1 の空調装置 100a 及び第 2 の空調装置 100b の空調運転を統括的に制御する。例えば、制御装置 120 は、第 1 の空調装置 100a 及び第 2 の空調装置 100b の空調運転を同条件で行うように調整してもよく、第 1 の空調装置 100a 及び第 2 の空調装置 100b の空調運転を異なる条件で行うように調整してもよい。制御装置 120 は、除去部 10c における処理対象ガスの流入の有無等に関する情報を制御装置 110 に送信することができる。

- [0083] 二酸化炭素除去装置及び二酸化炭素除去システムは、前記実施形態に限定されるものではなく、その趣旨を逸脱しない範囲で適宜変更を行ってもよい。例えば、二酸化炭素除去装置の制御部の制御内容は、反応容器における処理対象ガスの流入の有無を制御することに限られず、制御部は、反応容器における処理対象ガスの流入量を調整してもよい。
- [0084] 空調装置において、排気ファンに代えて送風機を用いて処理対象ガスを反応容器へ供給してもよく、自然対流により処理対象ガスが反応容器へ供給される場合には、排気手段を用いなくてもよい。また、温度制御手段及び圧力制御手段は、電気炉及びコンプレッサーに限定されるものでなく、吸着工程及び脱着工程において上述した各種の手段を用いることができる。温度制御手段は、加熱手段に限られず、冷却手段であってもよい。
- [0085] 空調装置において、空調対象空間、二酸化炭素除去部、排気手段、温度制御手段、圧力制御手段、濃度測定部等のそれぞれは、一つに限られるものではなく、複数配置されていてもよい。空調装置は、処理対象ガスの露点及び相対湿度を調整するための調湿器；空調対象空間の湿度を測定する湿度測定器；脱硝装置、脱硫装置、脱塵装置等の除去装置などを備えていてもよい。

実施例

- [0086] 以下、実施例及び比較例を用いて本発明の内容を更に詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0087] <吸着剤の準備>

(実施例1)

次の手順により炭酸セリウム ($\text{Ce}_2(\text{CO}_3)_3 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$) 20gを空气中で焼成した。まず、電気炉にて120℃まで5℃/分で昇温した後、120℃で1時間温度を保持した。その後、焼成温度300℃まで5℃/分で昇温した後、当該温度(300℃)で1時間温度を保持した。これにより、吸着剤を得た。

[0088] (実施例2)

炭酸水素アンモニウムと硝酸セリウム水溶液とを混合することにより炭酸

セリウムを得た。次に、ろ過及び洗浄により炭酸セリウムを単離した後、120℃で1時間温度を保持した。その後、焼成温度300℃まで5℃/分で昇温した後、当該温度（300℃）で1時間温度を保持した。これにより、吸着剤を得た。

[0089]（実施例3）

炭酸セリウムに代えてシュウ酸セリウム（ $\text{Ce}_2(\text{H}_2\text{O}_4)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ）を用いたこと以外は実施例1と同様にして吸着剤を得た。

[0090]（比較例1）

市販の酸化セリウムを吸着剤として用いた。

[0091]＜吸着剤の物性測定＞

実施例及び比較例の吸着剤を用いて、X線回折測定によりセリウム酸化物の格子定数を測定した。株式会社リガク製の広角X線回折測定装置（商品名：RINT2500HL）を用いて、下記条件に基づきX線回折測定を行った。 CeO_2 の回折ピークが観察された。次に、回折ピークのプロファイルフィッティングを行うことにより、複数の回折ピークの積分幅及び回折角を算出した。そして、回折ピークを用いて、最小二乗法によりセリウム酸化物の格子定数を算出した。測定結果を表1に示す。実施例1のXRDチャートを図4に示す。

X線源：Cu

X線出力：50kV－250mA

光学系：モノクロメータ付き集中ビーム

走査軸： $2\theta/\theta$

走査モード：連続

走査範囲： $5^\circ \leq 2\theta \leq 100^\circ$

走査速度：0.5°/分

サンプリング：0.01°

[0092]＜実験A：二酸化炭素の吸着量の測定＞

実施例及び比較例の吸着剤を用いて、二酸化炭素の吸着量を測定した。

[0093] まず、直径40mmの金型を使用して、吸着剤をプレス機により200kgfでペレット化した。次いで、ペレットを破砕した後、篩を用いて粒状（粒径：0.5～1.0mm）に整粒した。その後、メスシリンダーを用いて吸着剤1.0mLを量りとり、石英ガラス製の反応管中に固定した。

[0094] 次いで、前処理として、反応管に150mL／分でヘリウム（He）を流通させながら、電気炉を用いて吸着剤の温度を200℃まで昇温させた後、200℃で1時間保持した。これにより、不純物、及び、吸着剤に吸着したガスを除去した。

[0095] 次いで、吸着剤の温度が50℃になるまで冷却した後、電気炉で吸着剤の温度を50℃に保ちながら、CO₂パルス吸着試験によりCO₂吸着量を測定した。CO₂パルス吸着試験は、具体的には、下記方法により行った。測定結果を表1に示す。

[0096] [CO₂パルス吸着試験]

サンプルガスとして、12体積%のCO₂と88体積%のHeとを含む混合ガス10mLを用いた。当該サンプルガスをパルス状で4分おきに2分間導入した。この際、反応管内の全圧を1気圧に調整した。次いで、反応管の出口のCO₂濃度をガスクロマトグラフ（キャリアガス：He）により測定した。反応管の出口で測定されるCO₂濃度が飽和するまでサンプルガスの導入を継続した。CO₂濃度が飽和するまでに吸着した二酸化炭素量（単位：g）からCO₂吸着量（単位：g／L）を求めた。

[0097] [表1]

	格子定数 (nm)	CO ₂ 吸着量 (g／L)
実施例1	0.5429	22.6
実施例2	0.5426	17.9
実施例3	0.5422	12.5
比較例1	0.5412	0.33

[0098] 表1に示されるように、セリウム酸化物の格子定数が0.5415nm以上である場合に、優れたCO₂吸着量が得られることがわかる。

[0099] <実験B：二酸化炭素の吸着脱離試験>

実施例1の吸着剤を用いて、昇温脱離測定（TPD：Temperature Programmed Desorption Measurement）により各温度におけるCO₂脱離量を以下の手順で測定した。

[0100] まず、直径40mmの金型を使用して、吸着剤をプレス機により500kgfでペレット化した。次いで、ペレットを破砕した後、篩を用いて粒状（粒径：0.5～1.0mm）に整粒した。その後、吸着剤1.0mLを量りとり、吸着剤を反応管中に固定した。続いて、大気下において120℃で吸着剤を乾燥させた。

[0101] 次いで、吸着工程として、吸着剤の温度を20℃に調整しつつ、800ppmのCO₂と、He（バランスガス）と、2.3体積%の水分（H₂O）とを含む混合ガスを60cm³/minの流量で反応管に流通させた（反応管内の全圧：1気圧）。なお、水分は、ガスをバブラーに流通させることで導入した。反応管の出口ガスのCO₂濃度をガスクロマトグラフによって分析し、吸着飽和に達するまで混合ガスを流通させた。

[0102] 次いで、脱離工程として、吸着工程と同様の混合ガスを流通ガスとして60cm³/minの流量で反応管に流通させつつ、電気炉を用いて吸着剤の温度を2℃/minで20℃から200℃まで昇温した（反応管内の全圧：1気圧）。反応管の出口ガスのCO₂濃度を測定することでCO₂脱離量（出口ガスのCO₂濃度－800ppm）を算出した。CO₂脱離量は、出口ガスのCO₂濃度から混合ガスのCO₂濃度を除外することで算出した。測定結果を図5に示す。

[0103] 図5に示すように、濃度800ppmで吸着剤に吸着した二酸化炭素が、温度の上昇に伴い吸着剤から脱離することが確認された。

符号の説明

[0104] 10…流路、10a、10b、10d、10e、10f…流路部、10c…除去部、20…排気ファン、30…濃度測定器（濃度測定部）、40…電気炉、50…コンプレッサー、70a、70b…バルブ、80…吸着剤、1

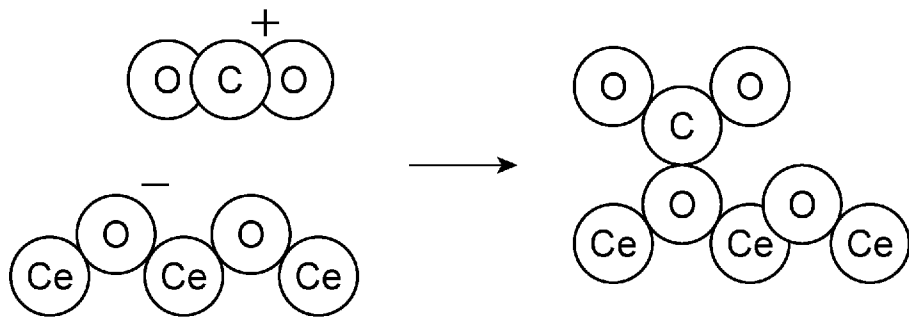
00, 100a, 100b…空調装置（二酸化炭素除去装置）、110, 120…制御装置（制御部）、200, 210…空調システム（二酸化炭素除去システム）、R…空調対象空間、S1, S3…空間、S2…中央部。

請求の範囲

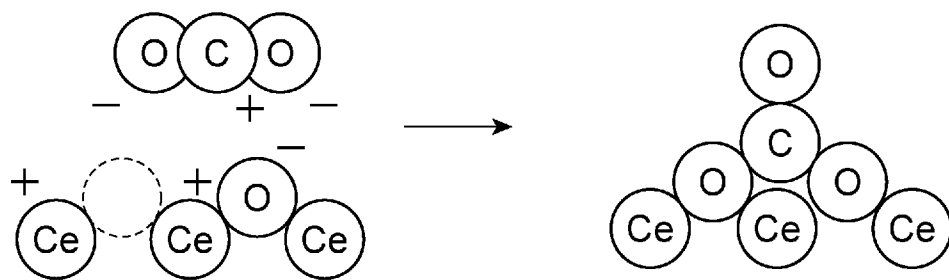
- [請求項1] 二酸化炭素を含有する処理対象ガスから二酸化炭素を除去するために用いられる吸着剤であって、
セリウム酸化物を含有し、
前記セリウム酸化物の格子定数が0.5415nm以上である、吸着剤。
- [請求項2] 前記セリウム酸化物の含有量が、吸着剤の全質量基準で90質量%以上である、請求項1に記載の吸着剤。
- [請求項3] 請求項1又は2に記載の吸着剤を、二酸化炭素を含有する処理対象ガスに接触させて二酸化炭素を前記吸着剤に吸着させる工程を備える、二酸化炭素の除去方法。
- [請求項4] 前記処理対象ガスの二酸化炭素濃度が5000ppm以下である、請求項3に記載の二酸化炭素の除去方法。
- [請求項5] 前記処理対象ガスの二酸化炭素濃度が1000ppm以下である、請求項3に記載の二酸化炭素の除去方法。
- [請求項6] 請求項1又は2に記載の吸着剤を備える、二酸化炭素除去装置。
- [請求項7] 請求項6に記載の二酸化炭素除去装置を備える、二酸化炭素除去システム。

[図1]

(a)

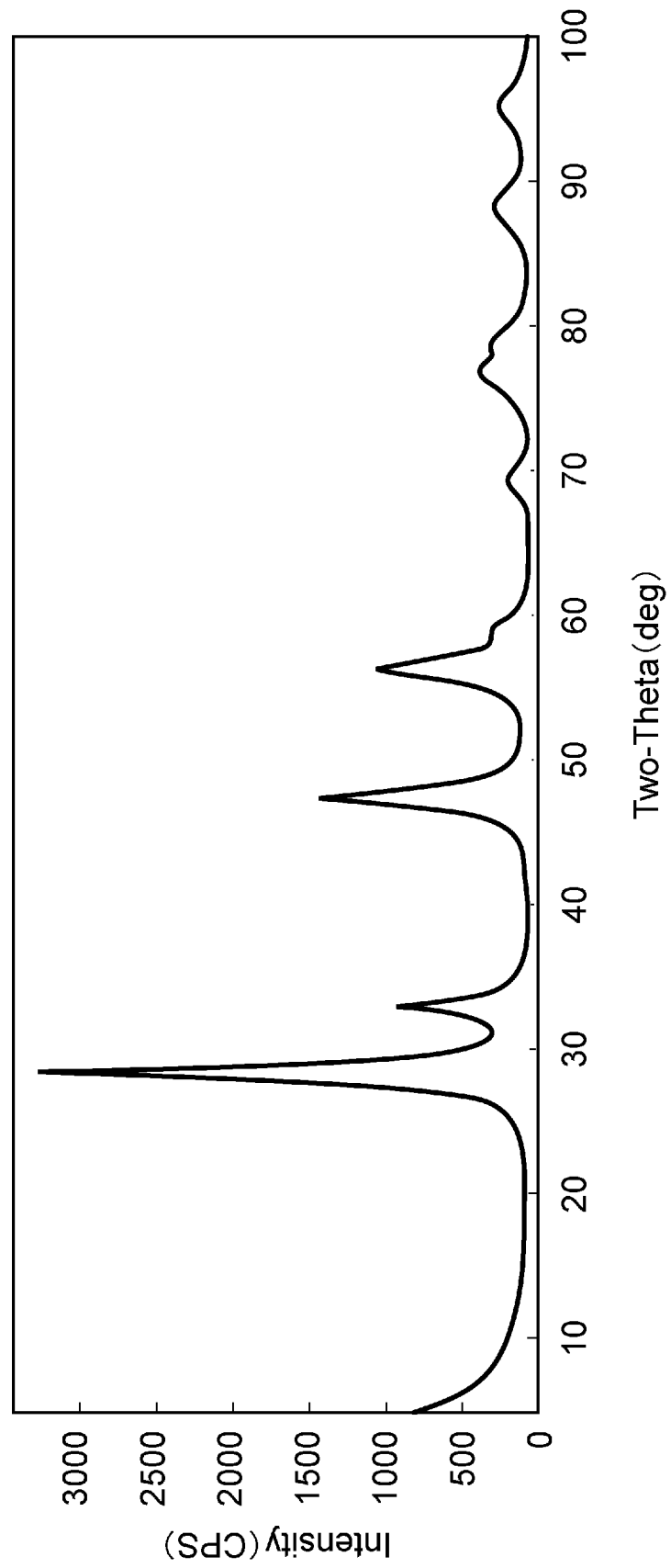


(b)

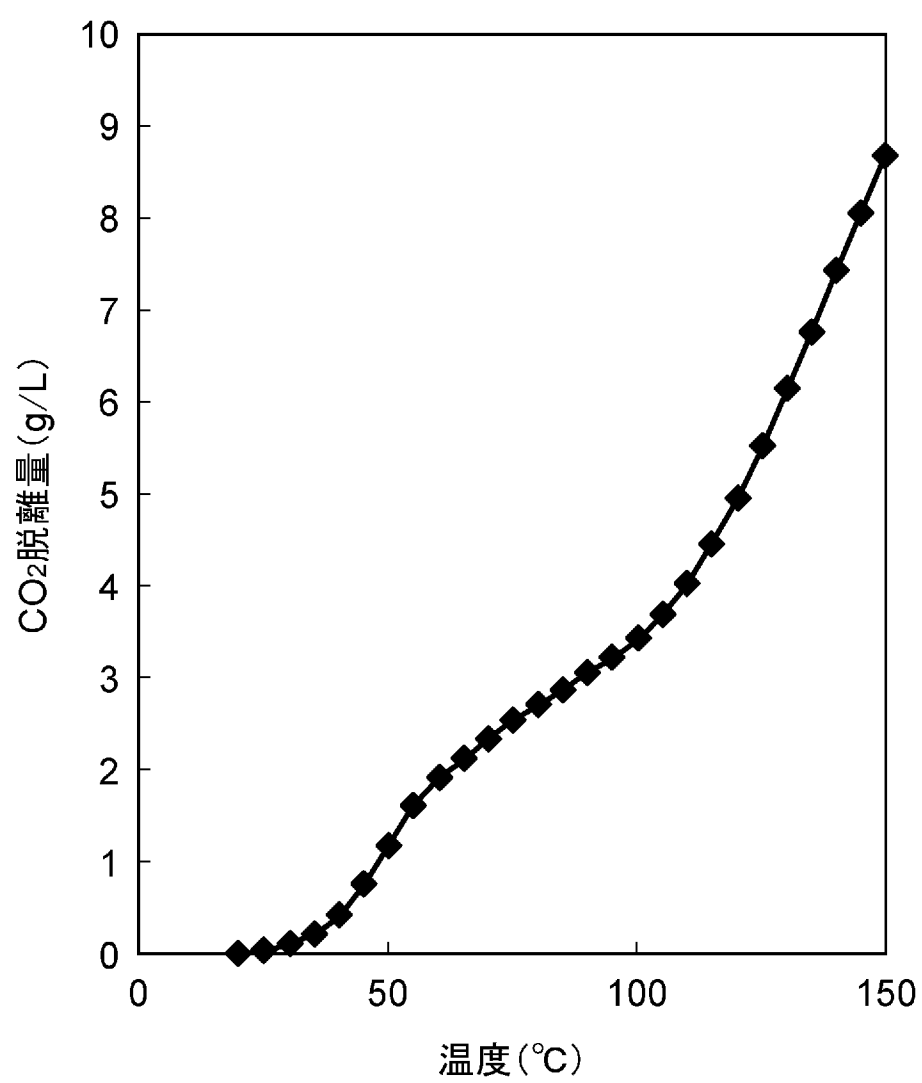


The diagram illustrates a power plant system 100(200) with two main cycles: a steam cycle and a CO₂ cycle. The steam cycle consists of a boiler 40, a steam generator 10c(10) with sections S1, S2, and S3, a turbine 50, and a condenser 80. The CO₂ cycle includes a compressor 30, a heat exchanger 20, a turbine 70a, a heat exchanger 10b(10), a separator 10d(10), and a turbine 70b. A control unit 110(200) is connected to various components via dashed lines. The system is labeled 100(200) at the top left.

[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013638

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01J20/06(2006.01)i, B01D53/04(2006.01)i, B01J20/30(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01J20/06, B01D53/04, B01J20/30

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2013-59703 A (Hitachi, Ltd.),	1-7
Y	04 April 2013 (04.04.2013), claims; paragraphs [0009], [0013], [0032]; fig. 1 to 7 & US 2013/0064746 A1 claims; paragraphs [0009], [0019], [0038]; fig. 1 to 7 & EP 2567751 A1 & CA 2785323 A1	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 April 2017 (27.04.17)

Date of mailing of the international search report
16 May 2017 (16.05.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013638

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 60-239323 A (Rhone-Poulenc Specialites Chimiques), 28 November 1985 (28.11.1985), claims; page 3, upper left column, line 20 to upper right column, line 9; page 5, upper right column, line 8; page 6, upper left column, lines 4 to 19 & US 4663137 A claims; column 1, lines 50 to 66; column 4, line 50; example 1 & EP 153227 A1 & FR 2559754 A1	1-7
A	WO 2015/125355 A1 (Sharp Corp.), 27 August 2015 (27.08.2015), paragraph [0033] & US 2016/0354722 A1 paragraph [0042] & CN 105939773 A	1-7

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B01J20/06(2006.01)i, B01D53/04(2006.01)i, B01J20/30(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B01J20/06, B01D53/04, B01J20/30

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2013-59703 A (株式会社日立製作所) 2013.04.04,	1-7
Y	特許請求の範囲、[0009][0013][0032]、図1-7 & US 2013/0064746 A1, 特許請求の範囲、[0009][0019][0038]、図1-7 & EP 2567751 A1 & CA 2785323 A1	1-7
Y	JP 60-239323 A (ローヌ・プーラン・スペシアリテ・シミーク) 1985.11.28, 特許請求の範囲、第3頁左上欄20行~右上欄9行、第5頁右上欄	1-7

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27.04.2017

国際調査報告の発送日

16.05.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

池田 周士郎

4Q

3909

電話番号 03-3581-1101 内線 3468

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	8 行、第 6 頁左上欄 4 行～ 1 9 行 & US 4663137 A, 特許請求の範囲、第 1 欄 5 0 行～ 6 6 行、第 4 欄 5 0 行、実施例 1 & EP 153227 A1 & FR 2559754 A1 WO 2015/125355 A1 (シャープ株式会社) 2015.08.27, [0 0 3 3] & US 2016/0354722 A1, [0 0 4 2] & CN 105939773 A	1-7