

1  
未来を拓く無機膜 環境・エネルギー技術シンポジウム  
2022/11/2

## 膜反応器を用いたCO<sub>2</sub>資源化の可能性

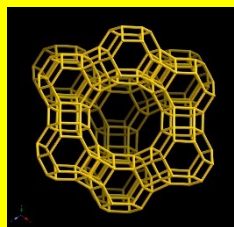
(芝浦工大工) 野村幹弘

# アウトライン

- 二酸化炭素分離膜
  - ゼオライト膜
  - シリカ膜
  - 二酸化炭素吸収膜
- 膜反応器の概要
- 二酸化炭素供給型膜反応器

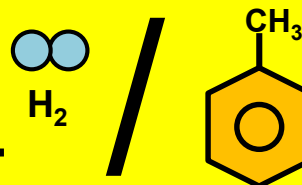
# 膜素材としてのゼオライト

FAU

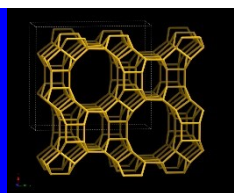


Molecular diameter  
[nm]

Hydrogen energy



MOR



0.9

0.8

0.7

0.6

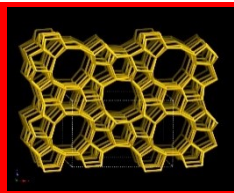
0.5

0.4

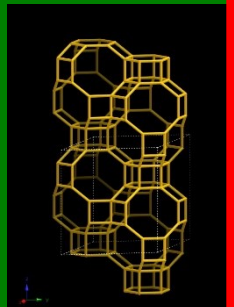
0.3

0.2

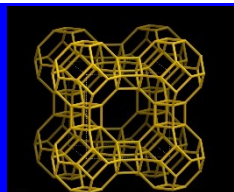
MFI



CHA



LTA



m-, o-xylene

p-xylene, toluene

SF<sub>6</sub>

CH<sub>4</sub>

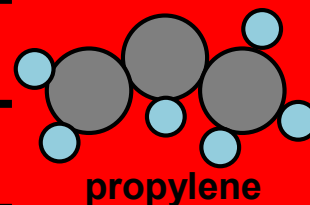
N<sub>2</sub>

CO<sub>2</sub>

H<sub>2</sub>

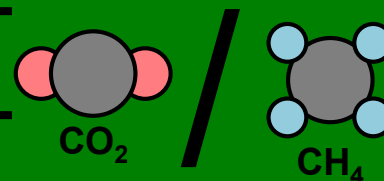
He

Selective production of propylene



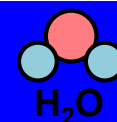
propylene

Purification of natural gas



CO<sub>2</sub>

CH<sub>4</sub>



H<sub>2</sub>O

# 二酸化炭素分離性能

## CO<sub>2</sub>分離膜

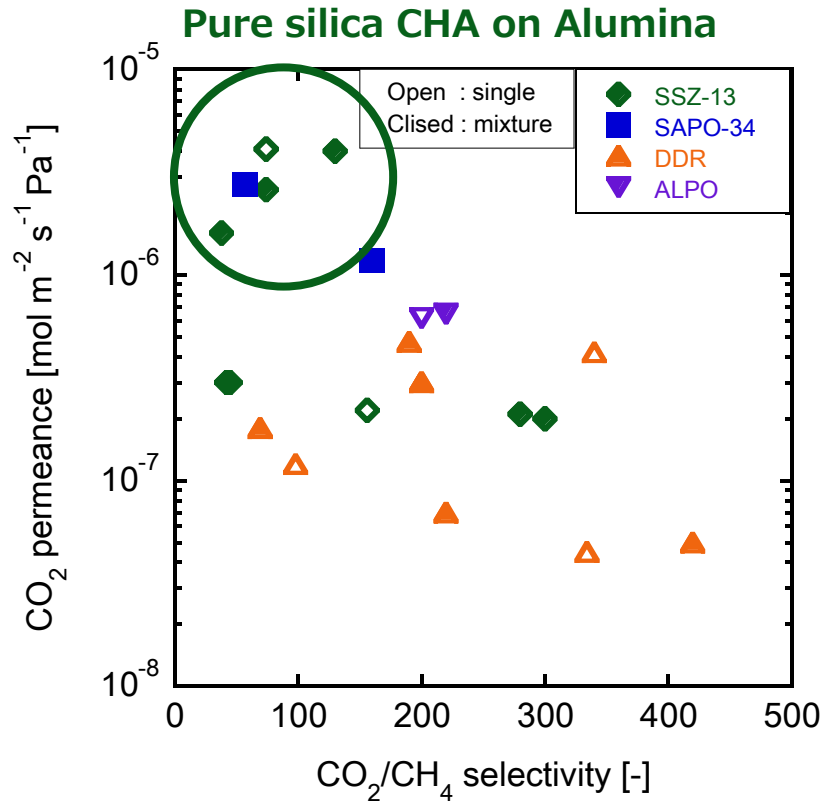


Fig. CO<sub>2</sub>分離膜の分離性能<sup>2)</sup>

アルミナ基材上Si-CHA膜はCO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>分離性を示した。

高透過性を示すシリカ基材上ハイシリカCHA膜の開発

## 検討項目

- ・ 合成温度の検討
- ・ 結晶化ゲルへの酸添加
- ・ 結晶化ゲルへのAl添加
- ・ 合成時間の検討

温度	酸添加	Al添加	時間
150℃	○	○	4h
~ 180℃	×	×	~ 16h

2) e.g. K.Kida et al., J. MEMBR. SCI., 522 (2017) 363-370

# 実験方法

## CHA種結晶<sup>1)</sup>

Si : TMAOH : HF : H<sub>2</sub>O  
= 1.0 : 0.8 : 0.8 : 4.0  
シリカ源 : TEOS

室温で一晩攪拌

加熱し、乾燥粉末  
になるまで攪拌

耐熱容器で150℃,  
24h 水熱合成

600℃, 5hで焼成

CHA種結晶

## CHA膜<sup>1)</sup>

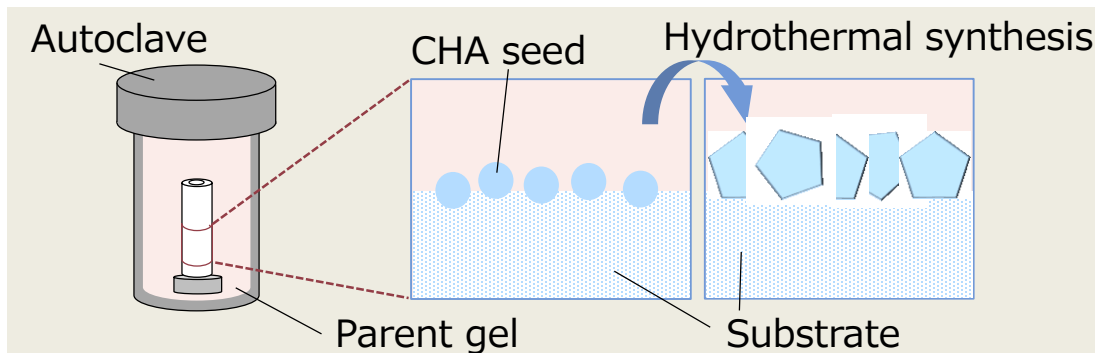
Si : TMAOH : HF : H<sub>2</sub>O  
= 1.0 : 0.8 : 0.8 : 5.0  
シリカ基材 : TEOS

シリカ基材へ種結晶を塗布

耐熱容器で150~180℃,  
4 ~ 24h水熱合成

600℃, 5hで焼成

CHA膜



## 膜性能評価方法

単成分ガス透過試験

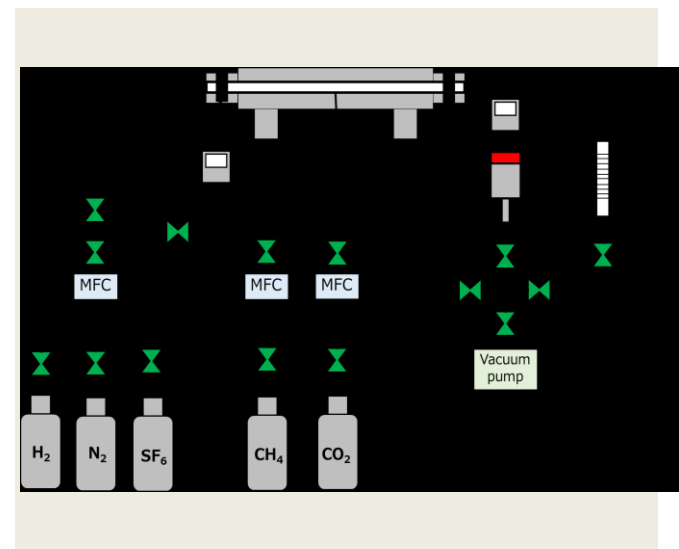
使用ガス : H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, SF<sub>6</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>  
透過温度 : 25℃

混合ガス透過試験

CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> : 50/50 mol%  
透過温度 : 25~200℃

XRD: KEYENCE, VE-8000

SEM: Rigaku, SmartLab



# 合成時間の影響

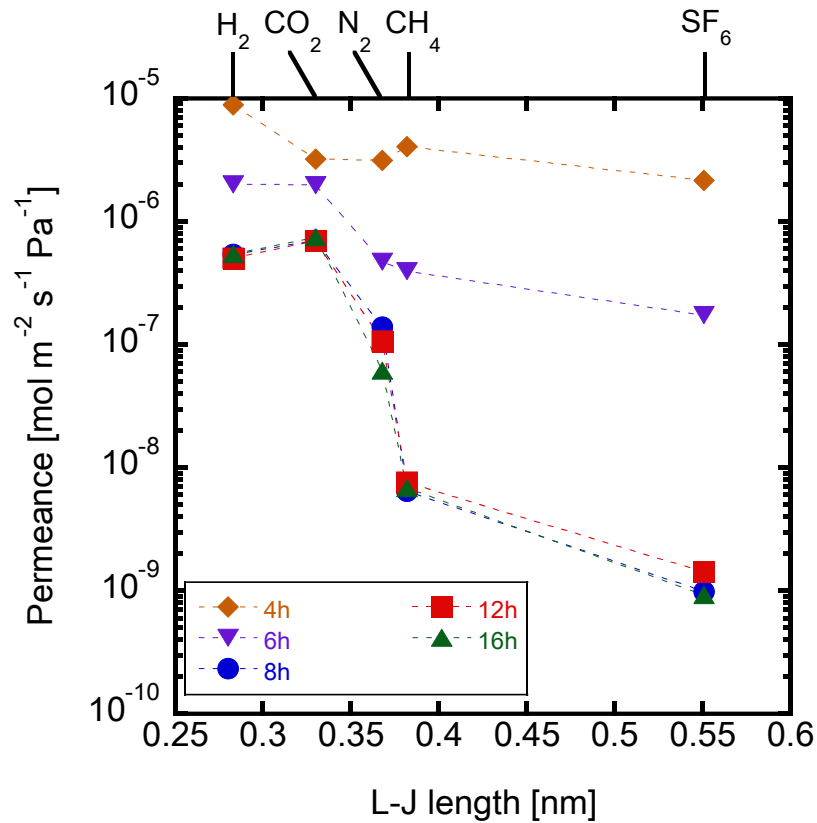


Fig. 単成分ガス透過試験結果 (室温)

Table 各ガス透過率比

合成時間	H <sub>2</sub> /SF <sub>6</sub>	CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub> /N <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>
8h	548	109	5.0	21.8

合成時間	H <sub>2</sub> /SF <sub>6</sub>	CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub> /N <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>
12h	352	92	6.5	14.2

合成時間	H <sub>2</sub> /SF <sub>6</sub>	CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub> /N <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>
16h	591	109	12	9.0

16 h 合成において、CO<sub>2</sub>透過率  $7.4 \times 10^{-7} \text{ mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ 、CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>透過率比 109のCHA膜を得た。8、12h合成においてもCO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>で高い分子ふるい性を示す膜を得ることができた。分離性能には合成時間が大きく影響する。

# CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>混合ガス透過試験

※供給ガス流量 100mL/min (CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> : 50/50mol%)

※室温

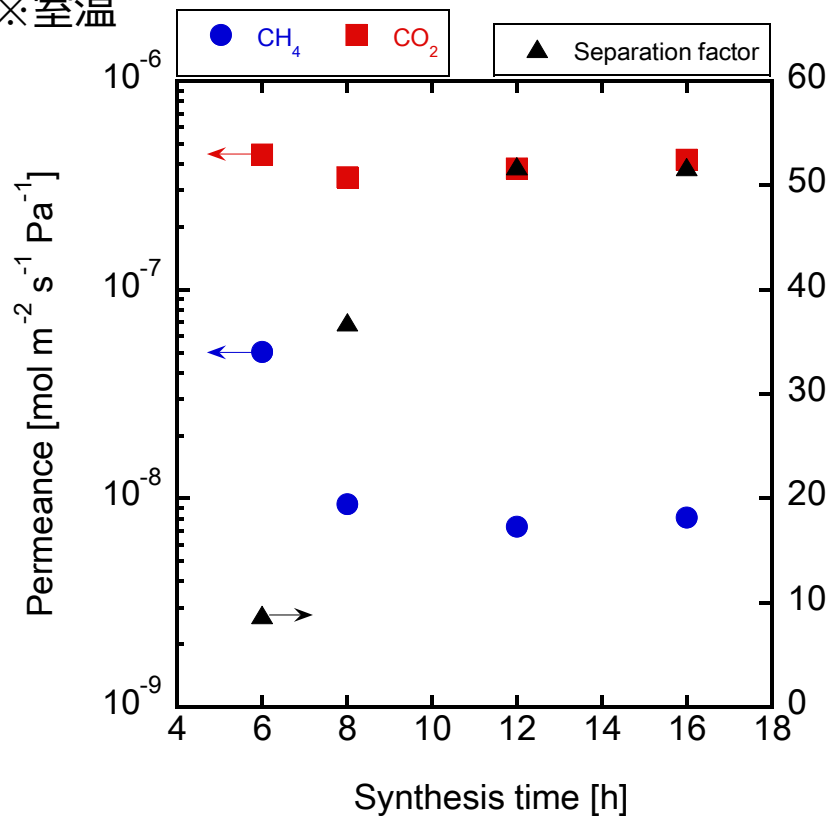


Fig. CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>混合ガス透過試験結果

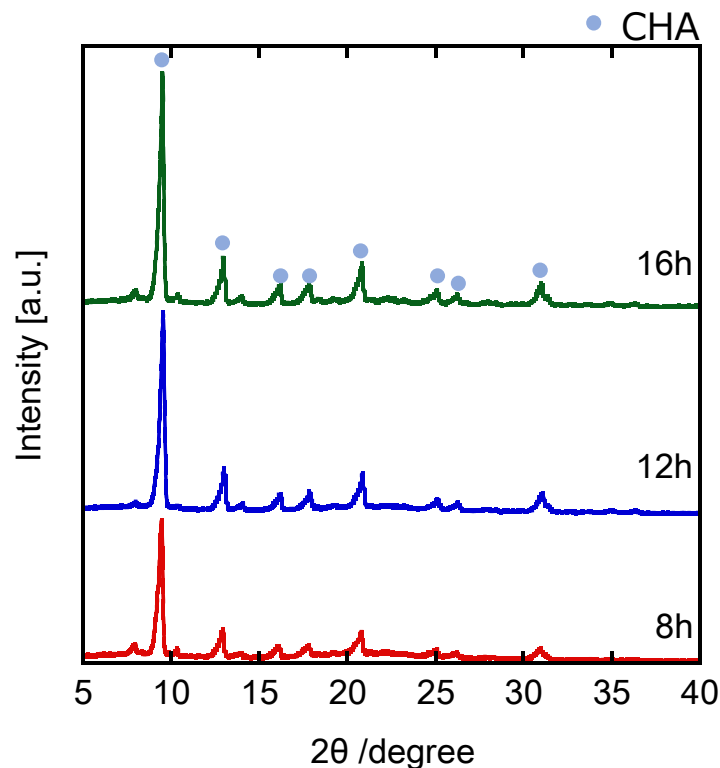


Fig. XRD結果

16 h 合成のCHA膜ではCO<sub>2</sub>透過率 $4.2 \times 10^{-7}$  mol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> Pa<sup>-1</sup>、CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>分離係数52を示した。合成時間が長いほど結晶性が大きく、分離性能は向上した。

# アウトライン

- 二酸化炭素分離膜
  - ゼオライト膜
  - シリカ膜
  - 二酸化炭素吸収膜
- 膜反応器の概要
- 二酸化炭素供給型膜反応器



# 対向拡散CVDシリカ膜

## ■ シリカ膜

- ・アモルファス構造
- ・高温水素選択透過性
- ・耐熱性、耐薬品性

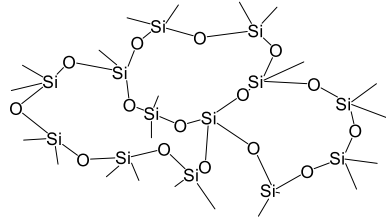


Fig. シリカ膜

## ■ 対向拡散CVD(化学蒸着)法<sup>1)</sup>

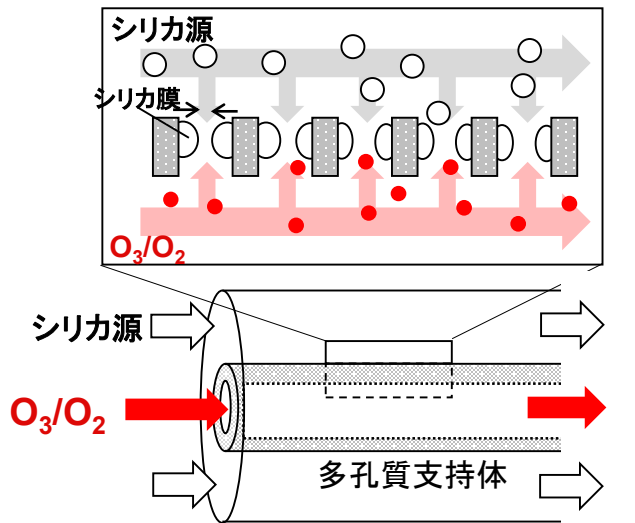
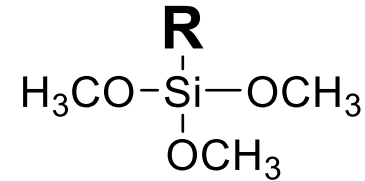


Fig. 対向拡散CVD法 反応器

前駆体と酸化剤を別側から同時供給  
細孔内部にシリカを蒸着

## ■ シリカ源による細孔径制御



アルコキシ基 → シリカネットワークの形成  
アルキル基 → 熱や酸化剤によって分解

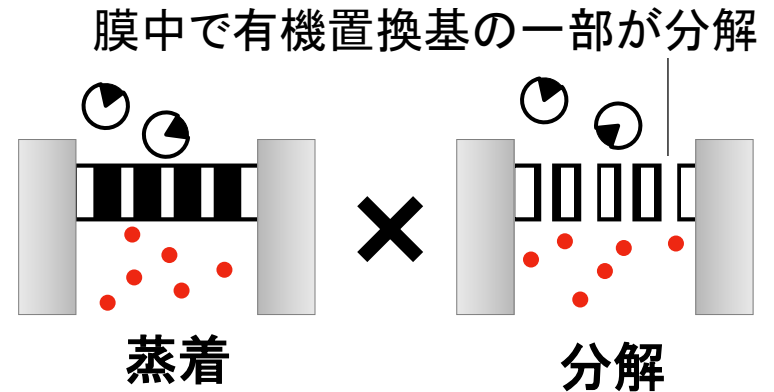


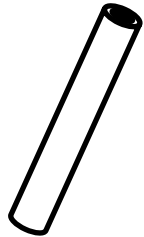
Fig. 有機置換基の導入

有機置換基の分解を利用した細孔径制御  
→炭化水素分離膜、液体分離膜

# 製膜方法

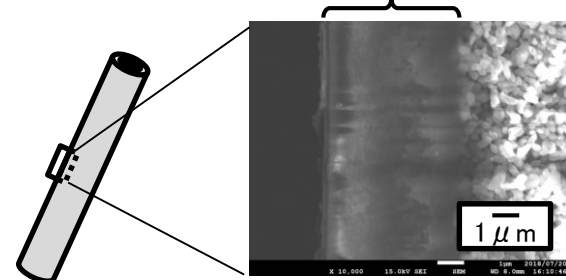
## ■ 中間層のコーティング

$\gamma$ -アルミナ層厚さ ca. 4  $\mu\text{m}$



アルミゾルコーティング  
600°C焼成、3 h

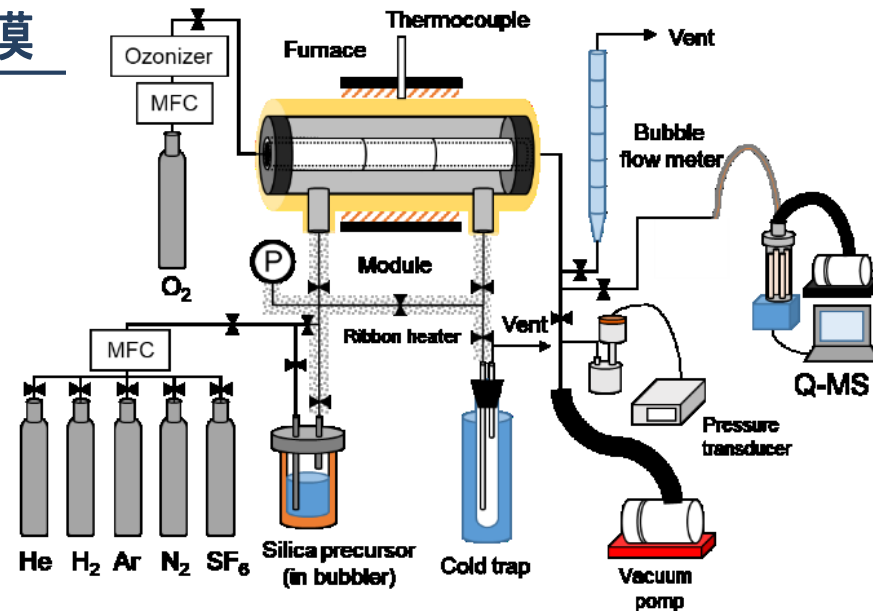
$\alpha$ -アルミナ多孔質支持体  
(平均細孔径: 150 or 200 nm)



$\gamma$ -アルミナ基材  
(平均細孔径: 4 nm)

## ■ 対向拡散CVD法によるシリカ膜の製膜

製膜温度	150-250°C
シリカ源蒸気濃度	1.0, 2.0 mol m <sup>-3</sup>
キャリアガス流量	100 min <sup>-1</sup>
酸化剤流量	200 mL min <sup>-1</sup>
蒸着時間	20-90 min



# 製膜方法とキャラクタリゼーション

## In situ 分析

四重極質量分析計  
(M-201QA-TDM, CANON ANELVA Corp.)  
加速電圧 30eV  
質量電荷比( $m/z$ ) 1 - 200

## ガス透過試験

### Gas permeation test

Gas He, H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, Ar, N<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>,  
C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>,

C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>, SF<sub>6</sub>  
Deposition temperature

Temperature  
Permeance

Selectivity

$$P_i = \frac{F_i}{A \times \Delta p} \quad a_{i,j} = \frac{P_i}{P_j}$$

### Pore size estimation (NKP method<sup>1)</sup>)

$$\frac{P_i}{P_{He}} \sqrt{\frac{M_i}{M_{He}}} = \frac{(d_p - d_i)^3}{(d_p - d_{He})^3}$$

## 前駆体構造

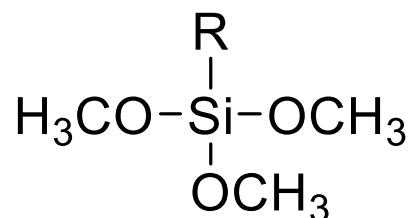


Fig. Precursor structure

Precursor	R
MTMOS	-CH <sub>3</sub>
PrTMOS	-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
APrTMOS	-C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> NH <sub>2</sub>
CPrTMOS	-C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> Cl
TFPrTMOS	-C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> CF <sub>3</sub>
HTMOS	-C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>

$P_i$ : Gas permeance [mol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> Pa<sup>-1</sup>]

$F_i$ : Flow rate of permeate [mol s<sup>-1</sup>]

$A$ : Membrane area [m<sup>2</sup>]

$\Delta p$ : Pressure difference [Pa]

$a_{i,j}$ : Ideal selectivity [-]

$M$ : Molecular weight

$d$ : Pore or molecular size

# MTMOS 250°C 蒸着

前駆体キャリアガス: He/ Ar/ SF<sub>6</sub>

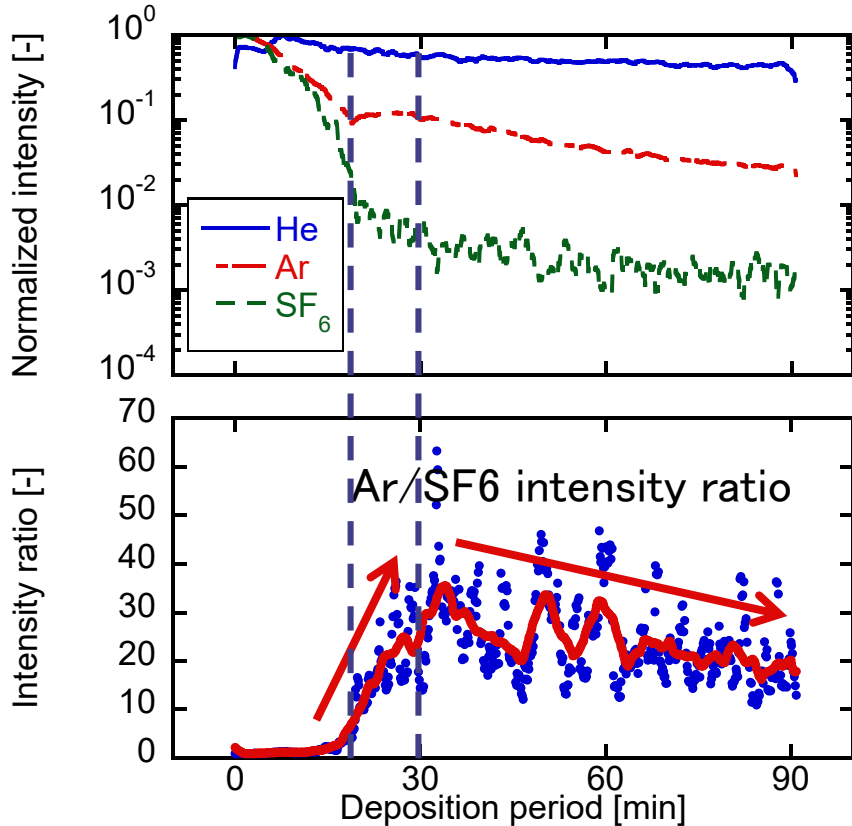


Fig. 製膜時におけるキャリアガスの拡散量の変化

- ✓ 製膜開始から15~20 minにかけてAr/SF<sub>6</sub> 比が増加。その後減少していた
- ✓ H<sub>2</sub> ガス透過率は  $1.2 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ , H<sub>2</sub> / SF<sub>6</sub> ガス透過率比1800を示した

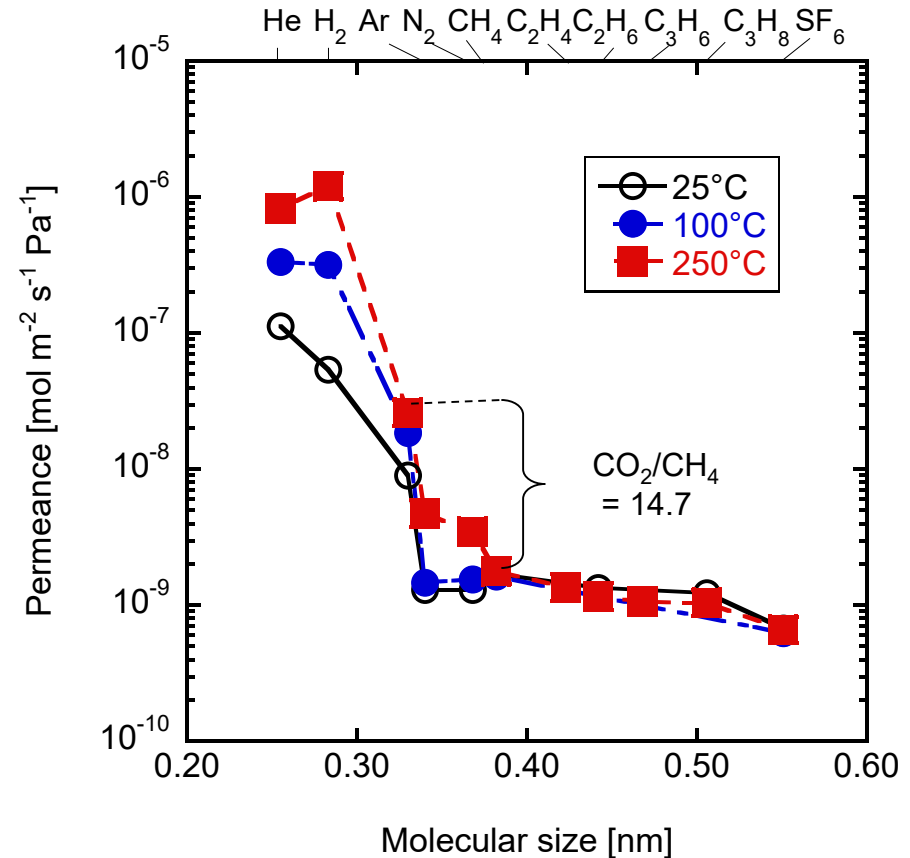


Fig. 得られた膜のガス透過性能

# シリカ源構造と膜性能

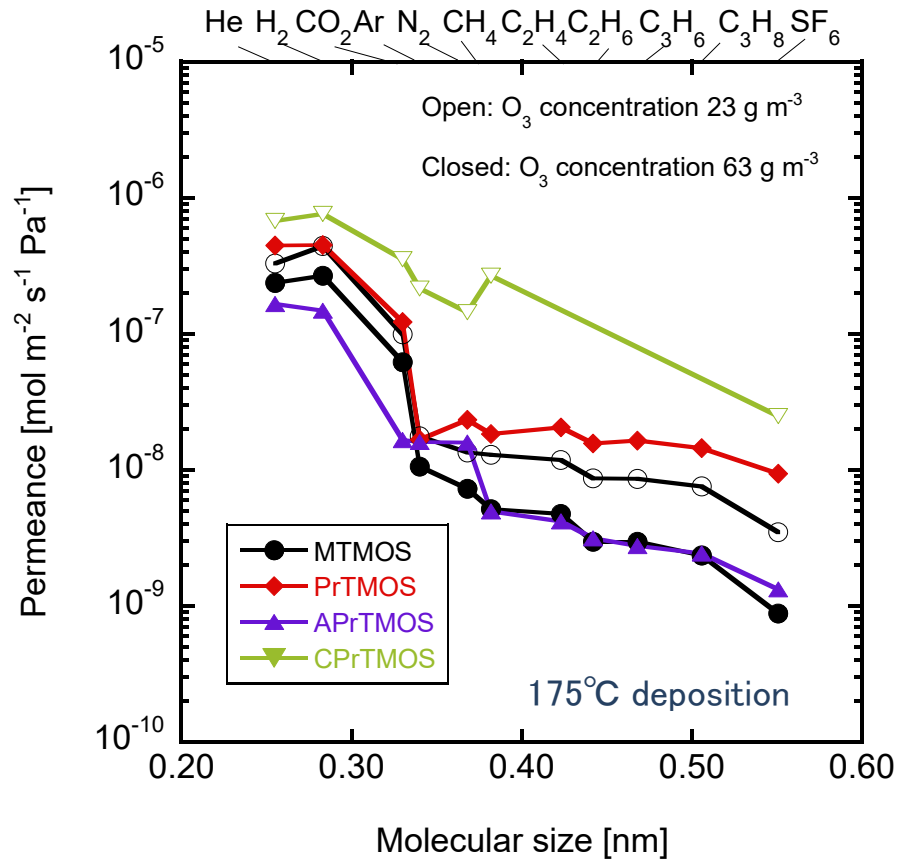


Table 透過の活性化エネルギー

	MTMOS	CPrTMOS	TFPrTMOS
He	13.5	15.1	11.5
H <sub>2</sub>	14.5	15.1	17.8
CO <sub>2</sub>	6.35	3.83	6.03
N <sub>2</sub>	3.71	7.19	5.67
CH <sub>4</sub>	-0.52	6.06	0.28

Fig. Membrane permeation performance (deposited at 175°C)

前駆体構造によるガス透過性の差異はほとんど見られず、オゾンの濃度が高い条件が蒸着が進行した。CO<sub>2</sub>透過の活性化エネルギーは低かった。

# CVDシリカ膜によるCO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>混合ガス分離

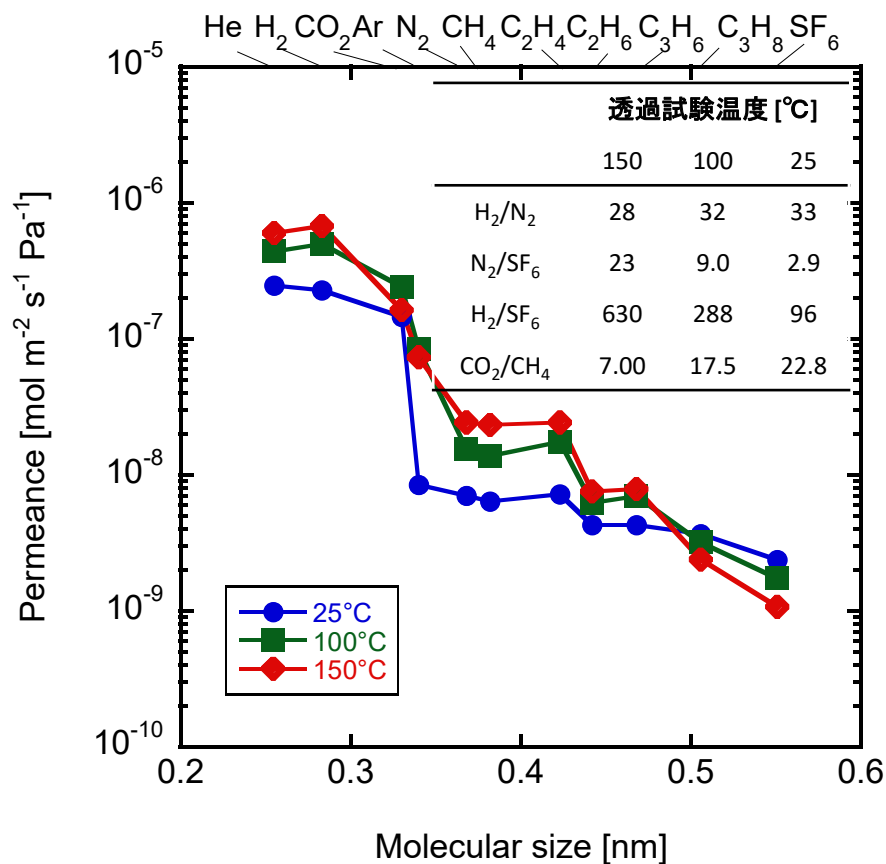


Fig. 単成分ガス透過試験性能

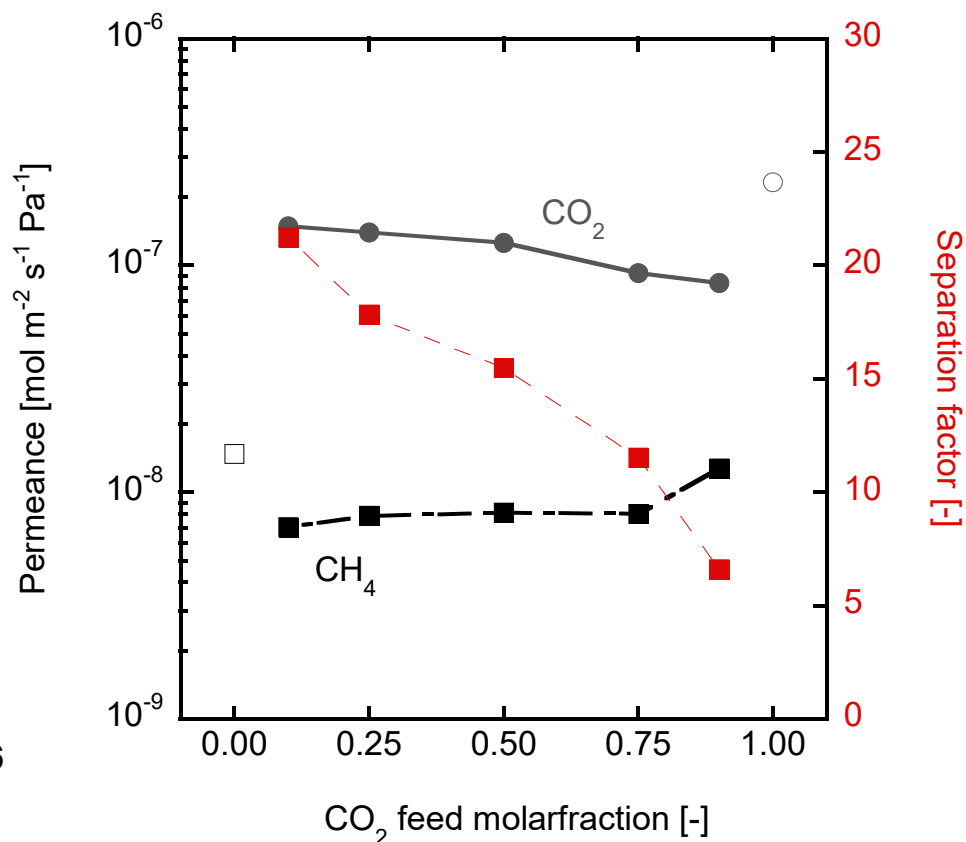
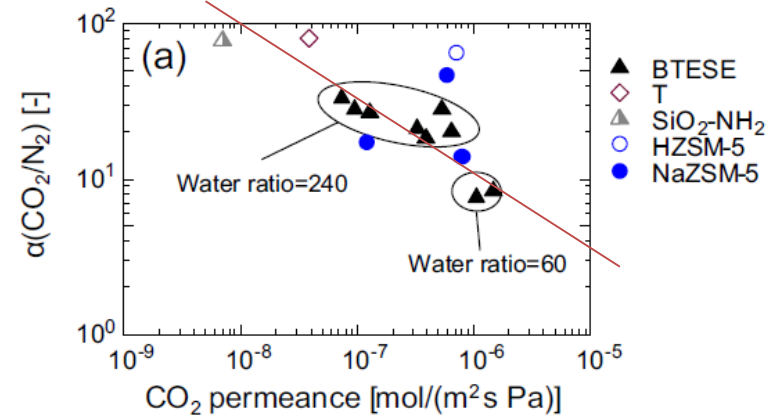
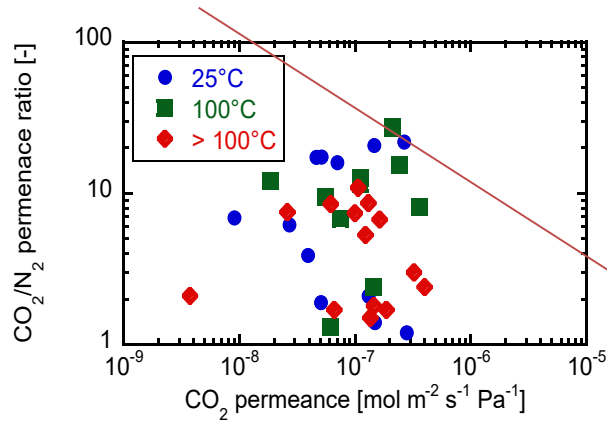


Fig. HTMOS蒸着膜CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>分離性能(室温)

混合ガス分離性能は供給するCO<sub>2</sub>ガスの濃度の影響を受け、低濃度CO<sub>2</sub>ほどCO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>分離係数が高い性能を示し、最大22を示した

# CO<sub>2</sub>分離性能のまとめ

CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>



CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>

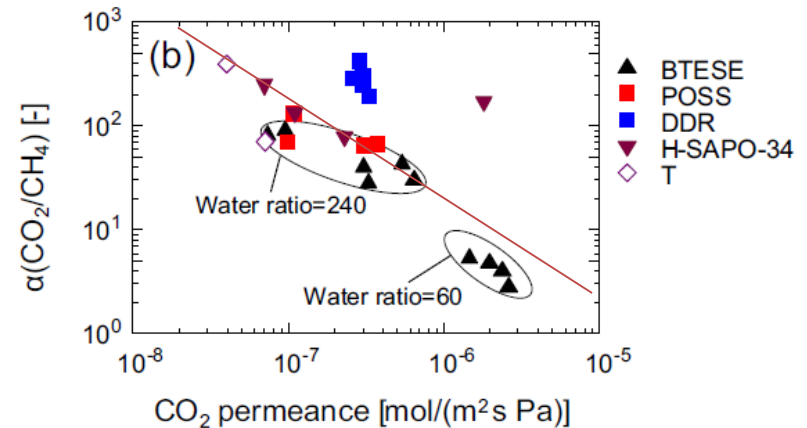
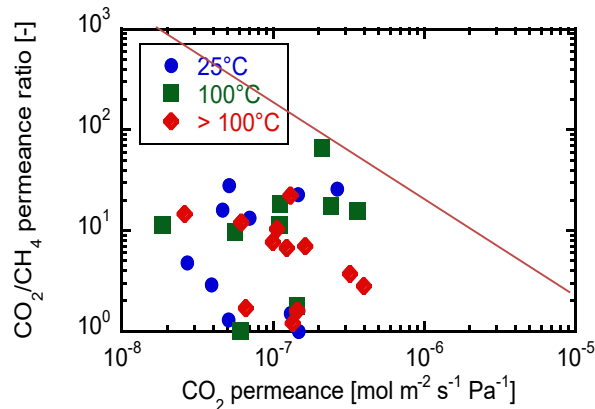


Fig. 当研究グループのCVD膜の二酸化炭素分離性能

Fig. 文献の二酸化炭素分離性能<sup>1)</sup>

当研究室の開発膜は、既報のアッパーバウンドと同レベルである。  
CO<sub>2</sub>透過率 $5 \times 10^{-6} \text{ mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ , CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>透過率比100が現状世界のトップレベルである。

1) Xin Yu, *Jour. Membr. Sci.*, 511 (2016) 219–227

# 交互供給処理による製膜

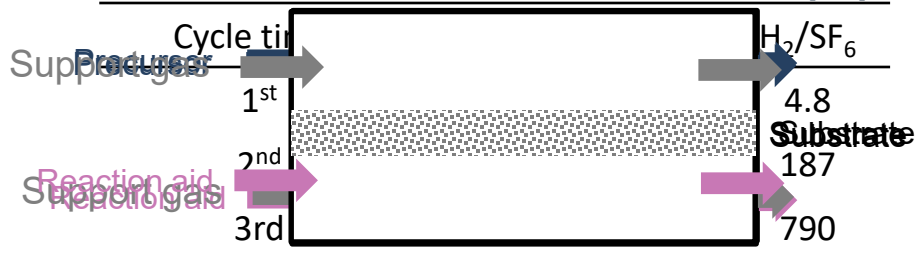
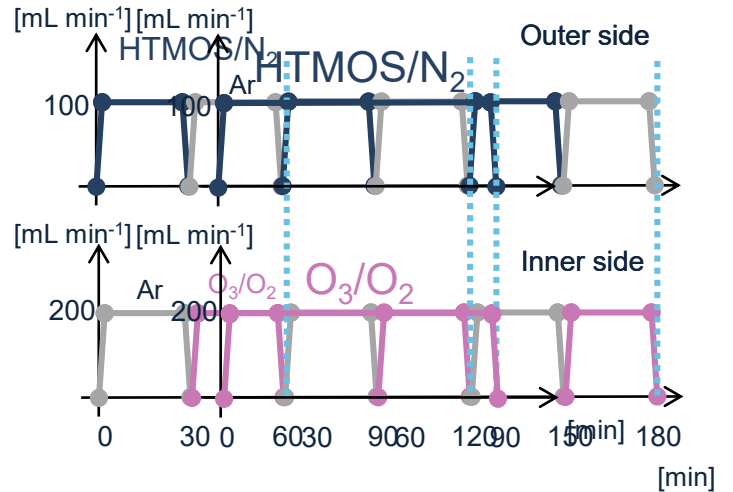


Fig. Deposition feeding reaction species

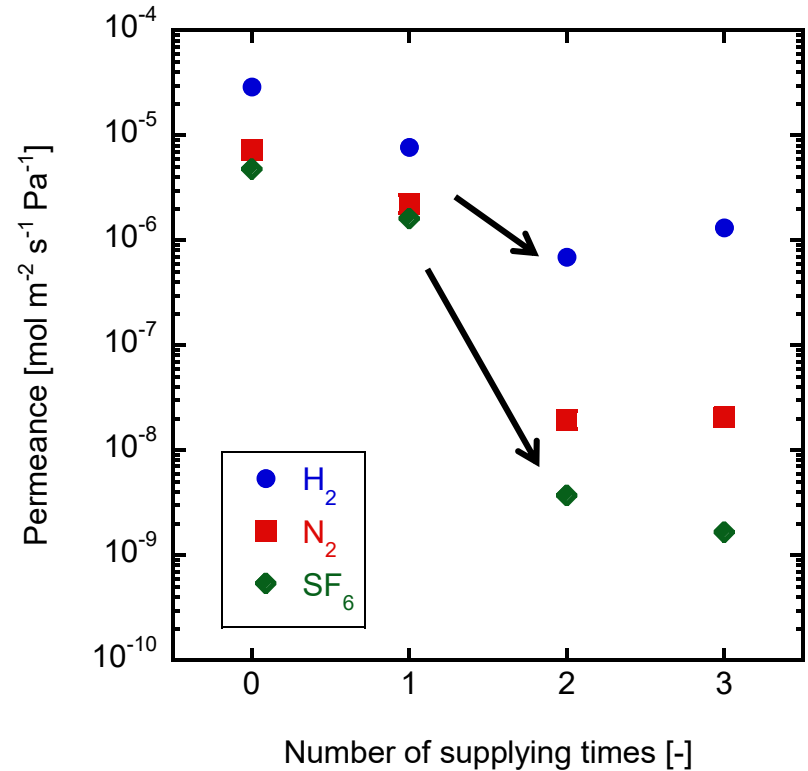


Fig. 交互供給処理回数と膜性能 (Precursor: HTMOS)

分子量が大きい前駆体を使用した膜が得られる理由として、基材細孔への凝縮が関わる可能性が高い、反応種の交互供給処理にてH<sub>2</sub>/SF<sub>6</sub>ガス透過率比 790を示した



# CVDと交互供給の比較

150°C, 30-90 min  
蒸着

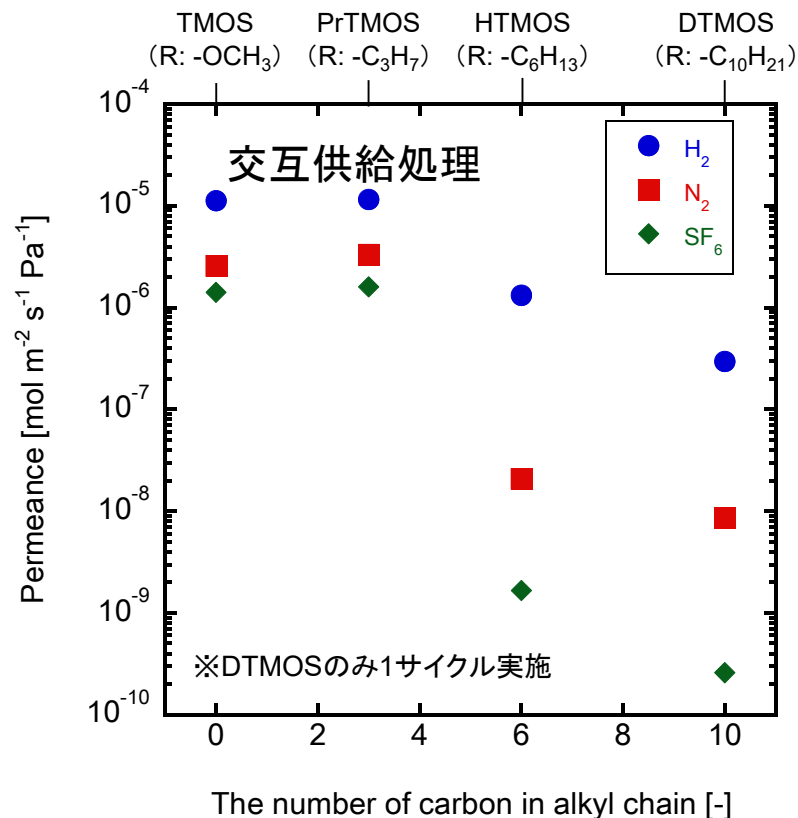
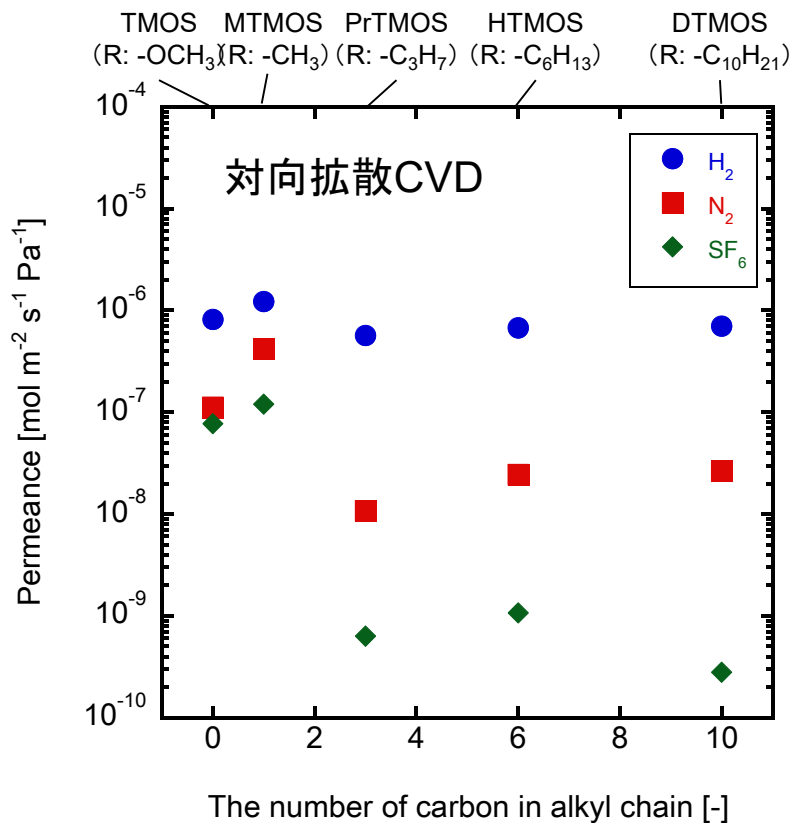


Fig. 前駆体アルキル基長さ150°C蒸着膜ガス透過性能の関係

いずれの前駆体も置換基長さが長いものほど透過率の低下が起こりやすい傾向がみられた  
有機置換基を量を増やした機能性膜の低温下での製膜が可能となる

# 150°C蒸着膜性能比較(交互供給)

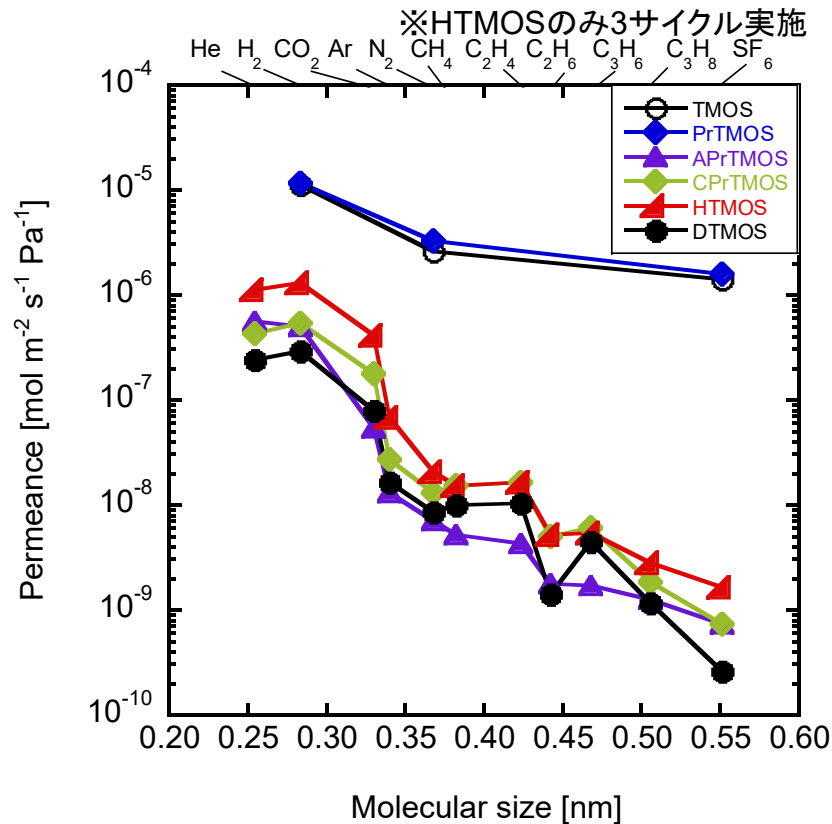
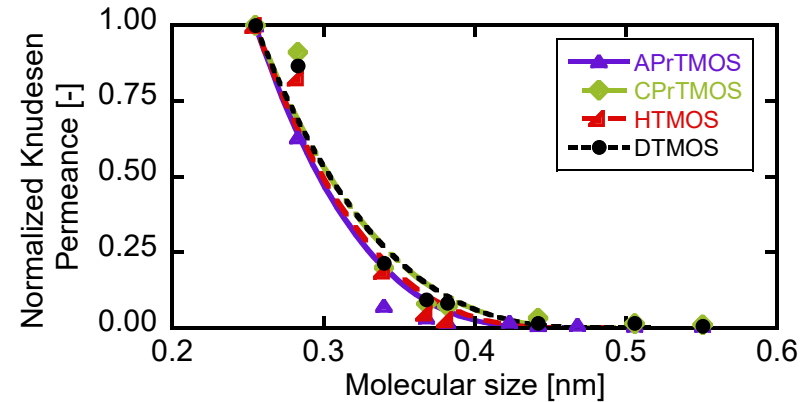


Fig. 150°C交互供給オゾン処理膜  
前駆体と透過率と分子径の大きさの関係



前駆体	NKP細孔径 [nm]
TMS	—
PrTMS	—
APrTMS	0.42
CPrTMS	0.50
HTMOS	0.43
DTMS	0.50

交互供給法にて、CO<sub>2</sub>透過率 $4.1 \times 10^{-7}$  mol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> Pa<sup>-1</sup>、CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>透過率比20の膜が得られた

# アウトライン

- 二酸化炭素分離膜
  - ゼオライト膜
  - シリカ膜
  - 二酸化炭素吸収膜
- 膜反応器の概要
- 二酸化炭素供給型膜反応器

# 高温吸収剤 (Li<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>)

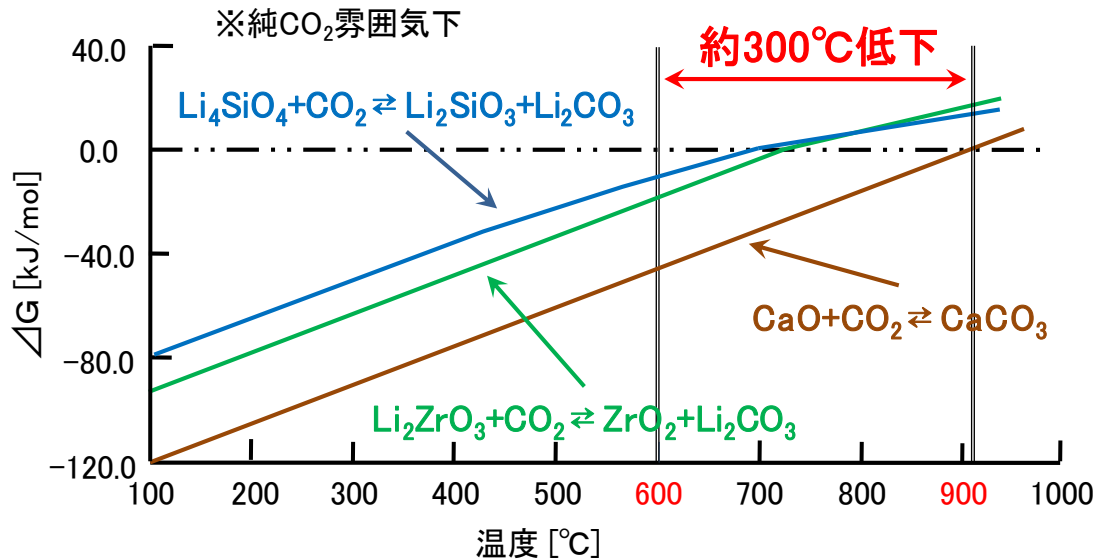


Fig. 吸収反応のギブス自由エネルギー変化

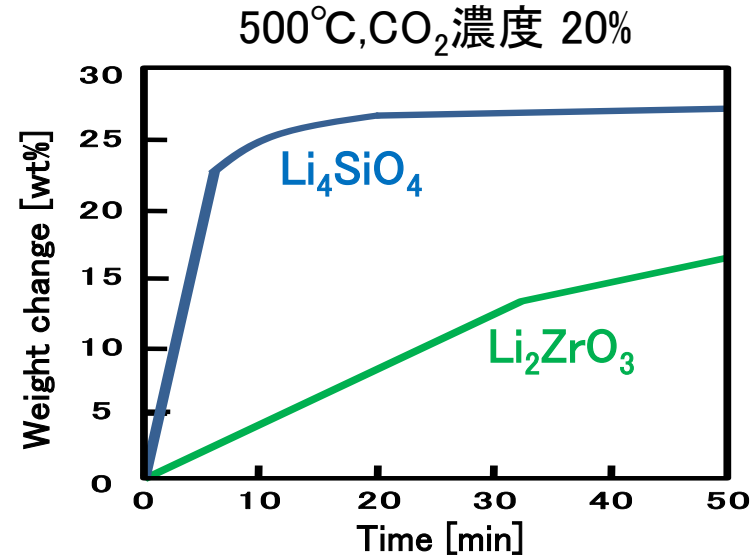
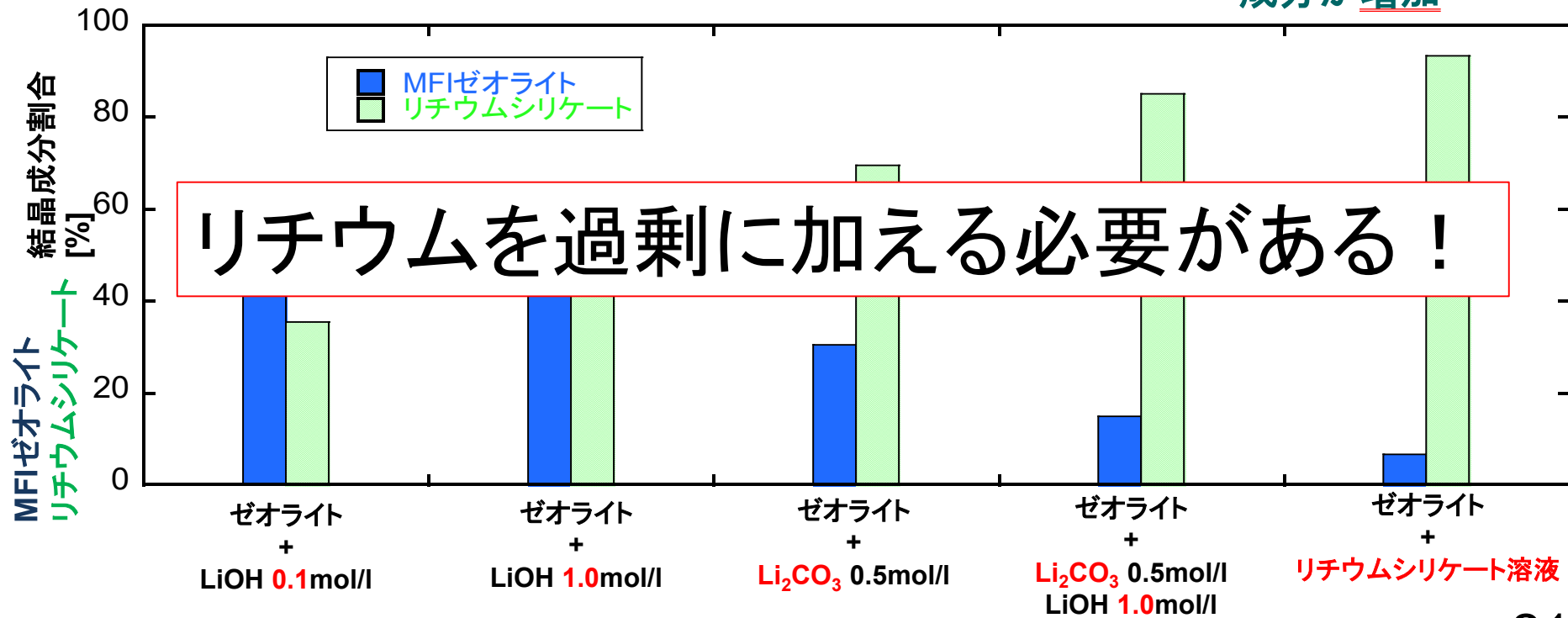
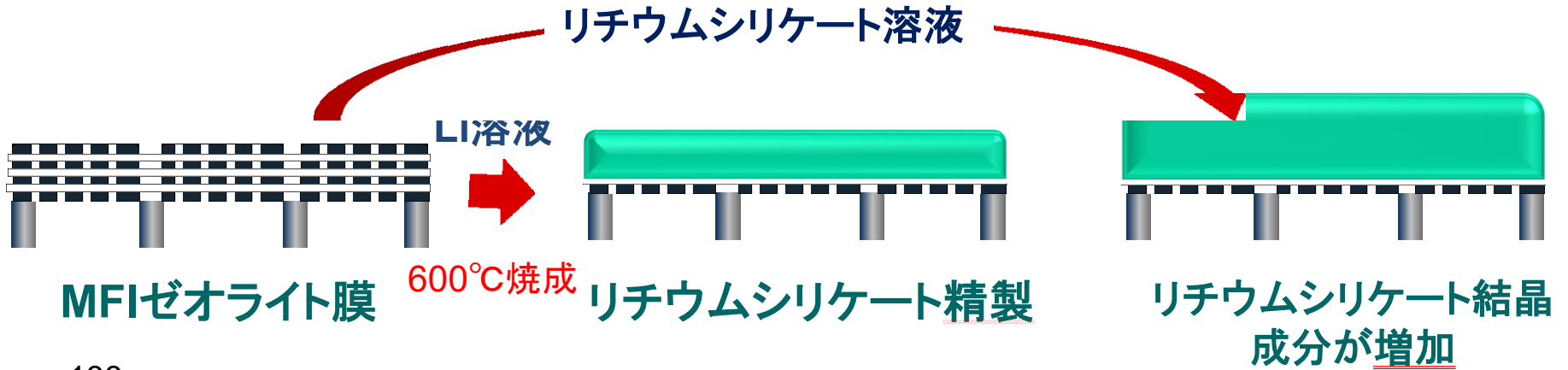


Fig. CO<sub>2</sub>吸収による重量増加

⇒ 500°C ~ 600°C 程度の高温で可逆的な反応

# ゼオライト変換法



1) Y. Nishi et al., Proc. of ICIM11, 917, Washington, U. S. A. (2010)

# 研究コンセプト

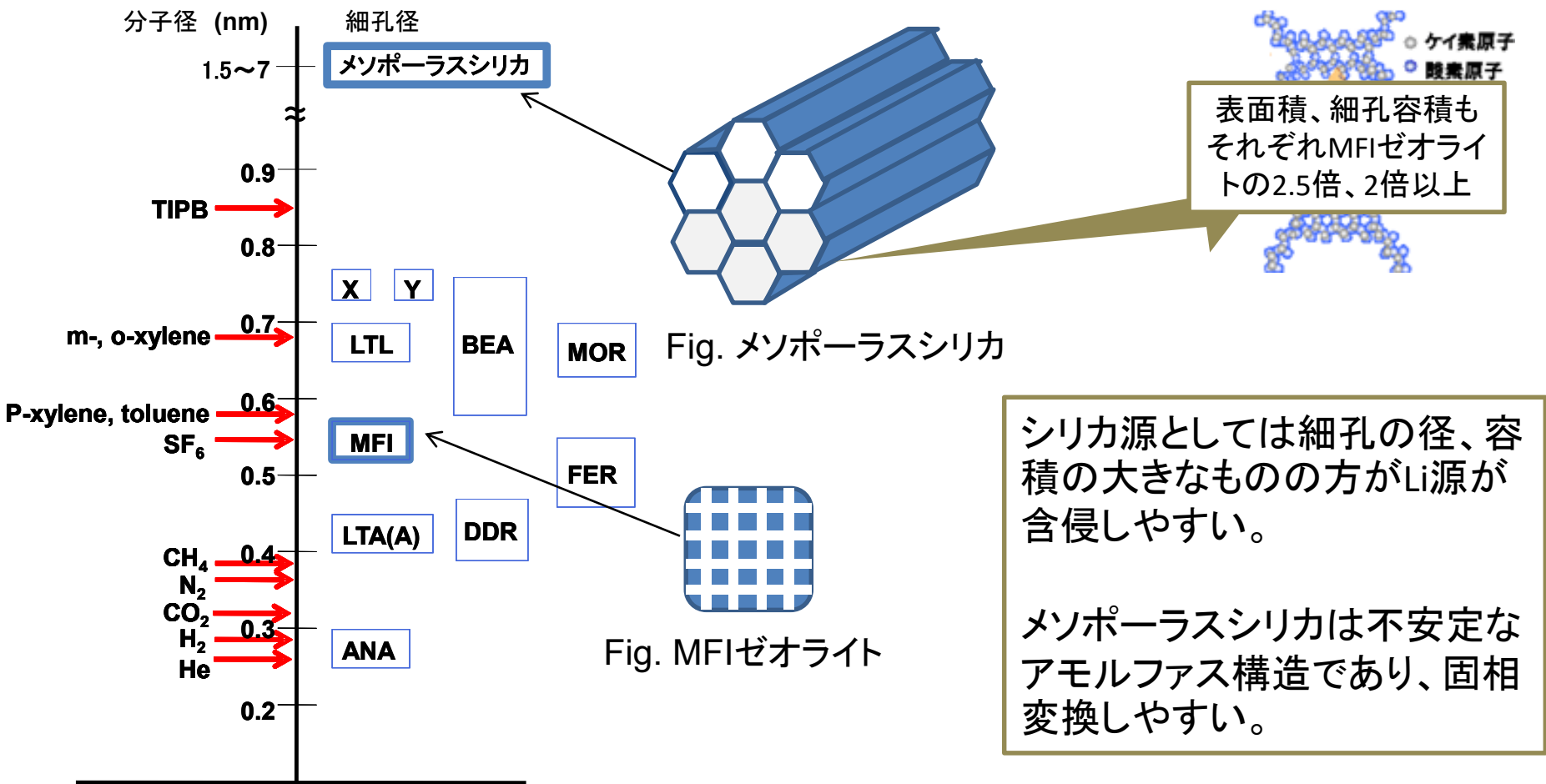
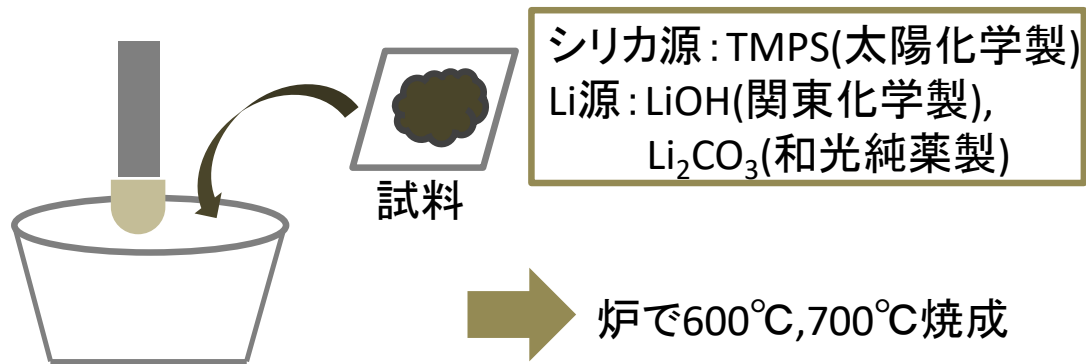


Fig. 代表的な気体の分子径と各種ゼオライトの細孔径

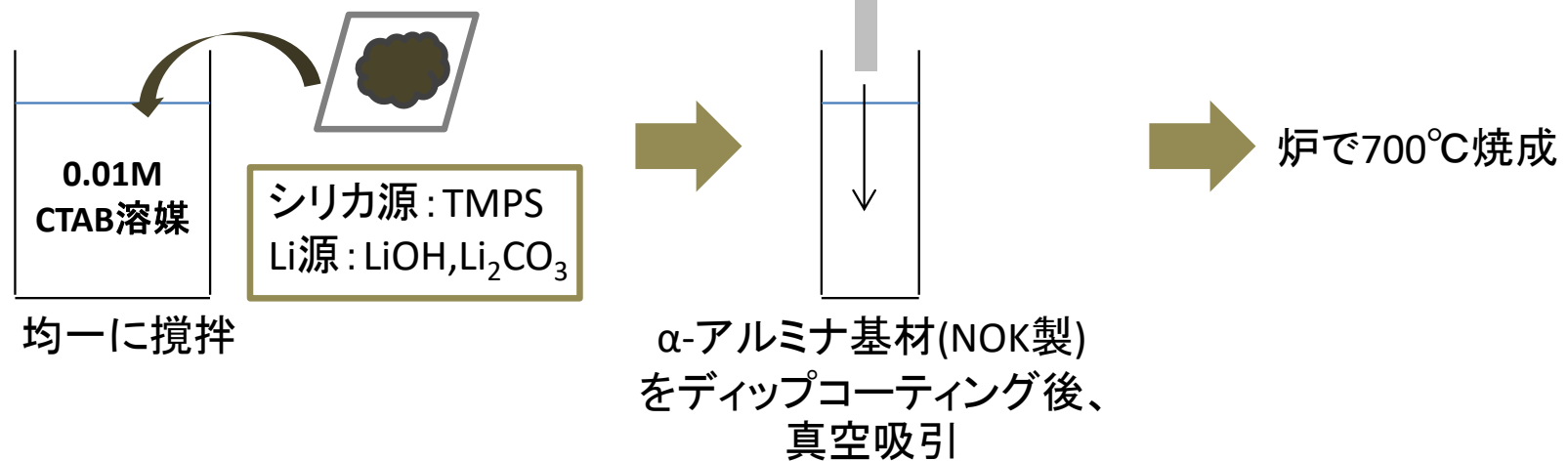
# 実験方法

## —製粉—



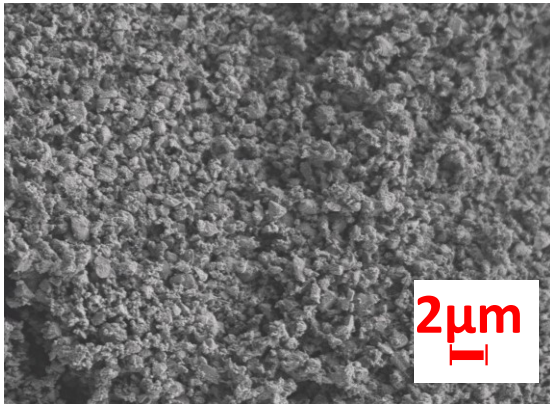
自動乳鉢で細かく  
粉碎・攪拌

## —製膜—



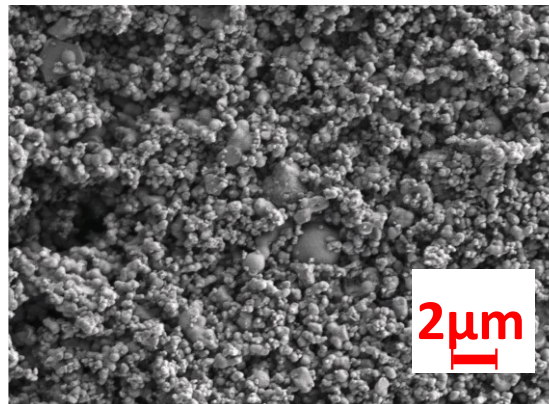
# 粉末を用いた検討 (SEM)

ゼオライト

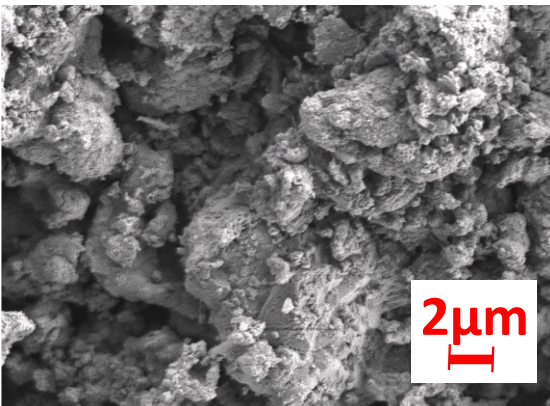


a) Silton MT-100種結晶(粉碎後)  
倍率3000倍

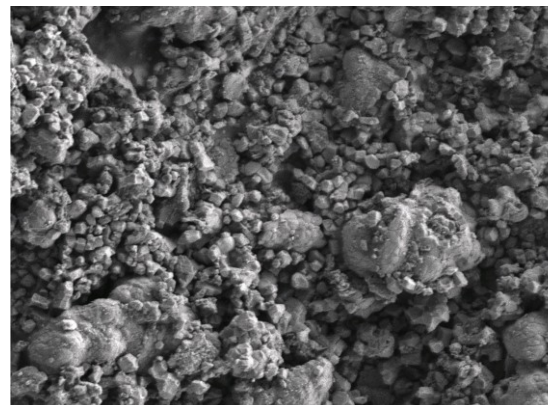
メソポーラスシリカ



TMPS-1.5種結晶(粉碎後)  
倍率5000倍



リチウムシリケート(Silton MT-100由来)  
倍率5000倍



リチウムシリケート(TMPS-1.5由来)  
倍率5000倍

TMPS由来のリチウムシリケートは微小な構造を保つ

。



# 粉末を用いた検討 (XRD, TG)

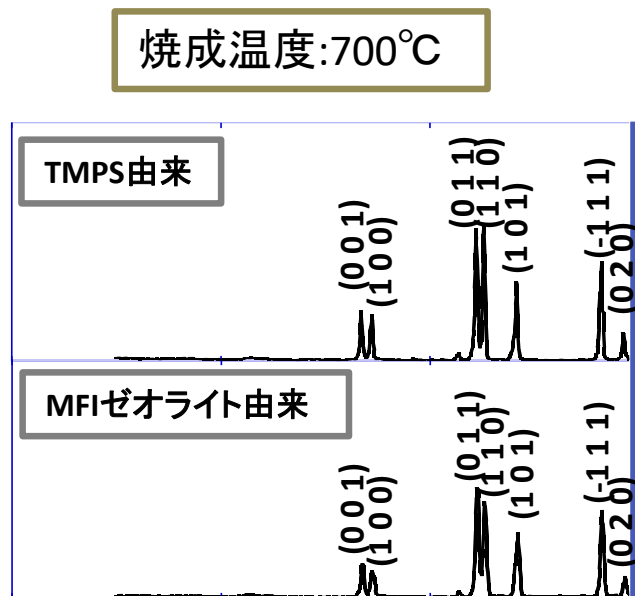


Fig. 異なるシリカ源から得たサンプルのXRD結果

TMPS由来のリチウムシリケートは結晶化度が高い。

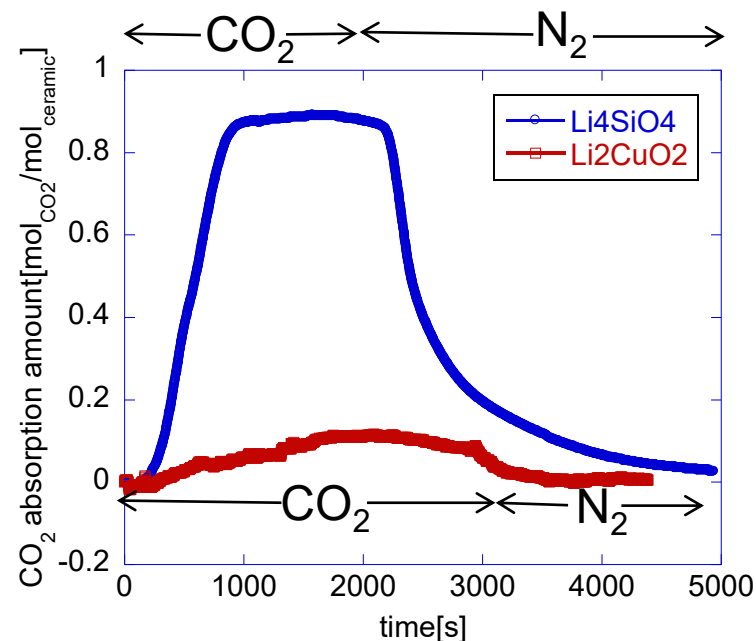


Fig. 700°Cにおけるガス雰囲気切り替えTG測定結果

リチウムシリケートの反応速度は速い。

# 高温透過試験

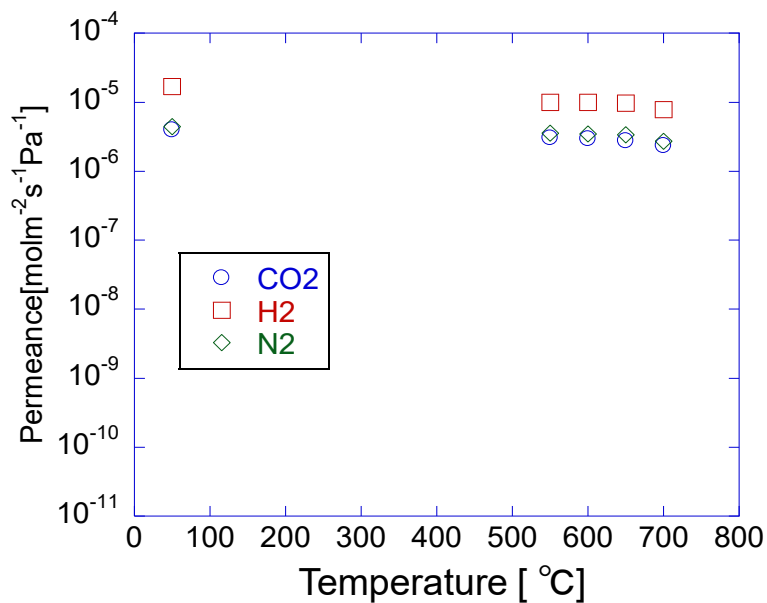


Fig. 炭酸塩コーティング前

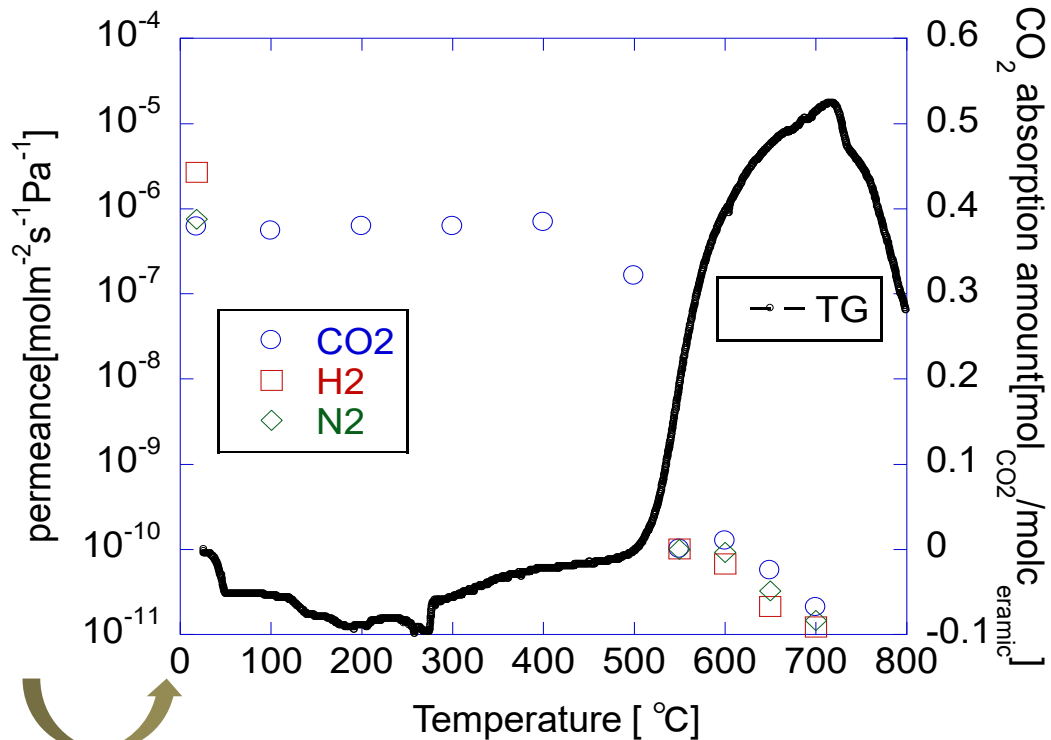


Fig. 炭酸塩コーティング後

Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>80mol%-  
K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>20mol%溶液で  
ディップコーティング

# 高温透過試験

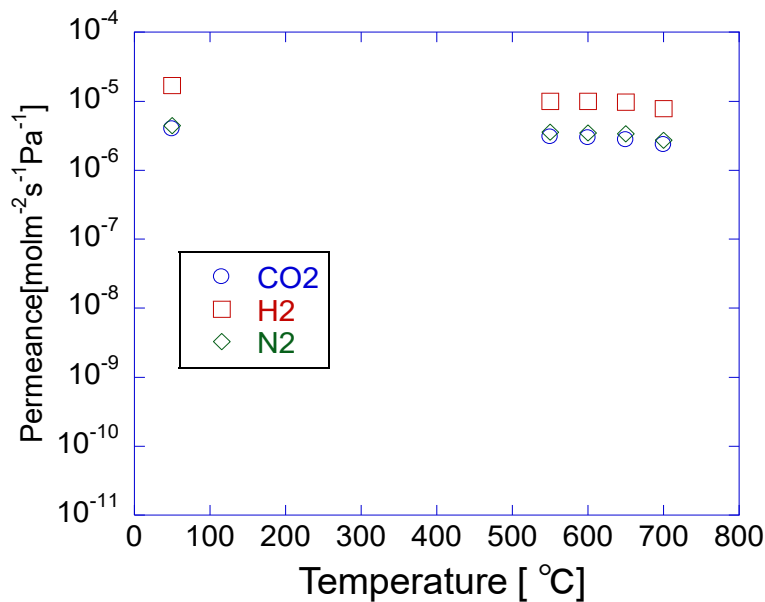
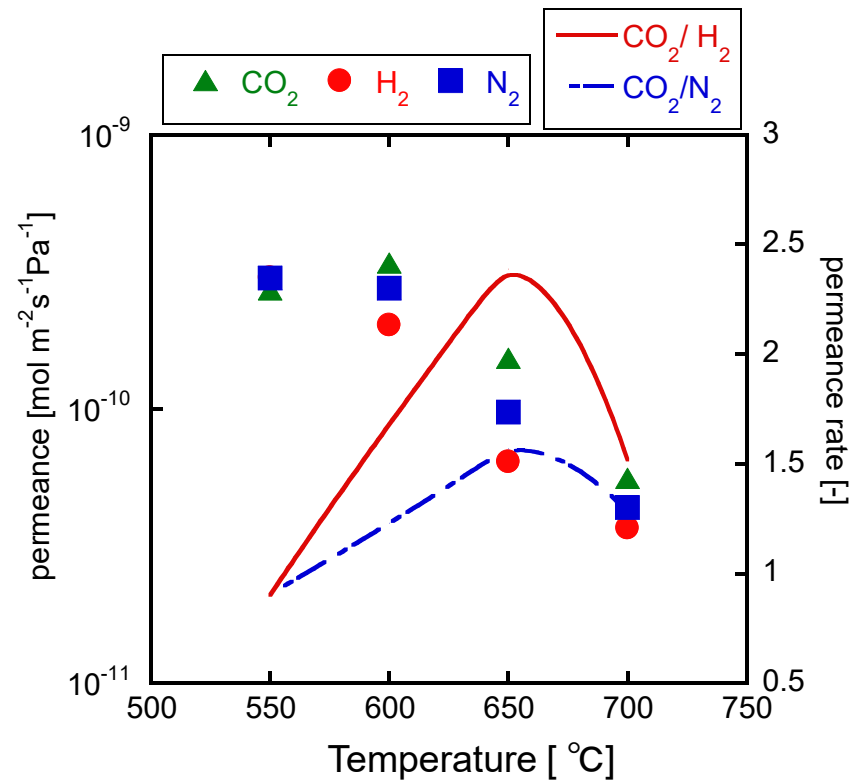


Fig. 炭酸塩コーティング前



炭酸塩コーティングにより、650 $^{\circ}\text{C}$ でCO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>選択性1.74、CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>選択性2.65を示す膜の作製に成功した。

# 二酸化炭素分離膜～まとめ

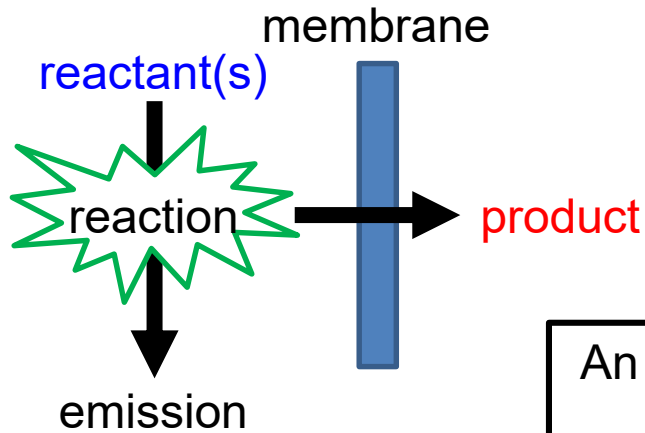
- CHA膜
- シリカ基材を用いることで、CO<sub>2</sub>透過率 $4.2 \times 10^{-7} \text{ mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ 、CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>分離係数52を示した。基材のアルミニウムを除去することで透過性能が向上することが示唆された。
- CVDシリカ膜
- 新規製膜法である交互供給法にて、CO<sub>2</sub>透過率 $4.1 \times 10^{-7} \text{ mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$ 、CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>透過率比20の膜が得られた。
- 二酸化炭素吸収膜
- Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>とK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>の炭酸塩でコーティングすることにより、膜の緻密性が向上した。650°CでCO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>選択性は2.65と、二酸化炭素選択性を示す膜の作製に成功した。

# アウトライン

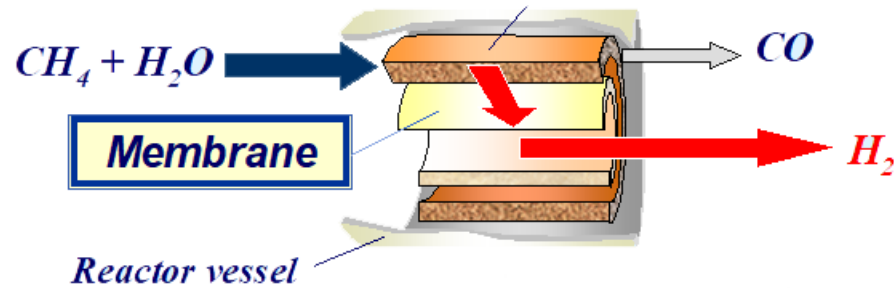
- 二酸化炭素分離膜
  - ゼオライト膜
  - シリカ膜
  - 二酸化炭素吸収膜
- 膜反応器の概要
- 二酸化炭素供給型膜反応器

# Membrane reactors

## extractor

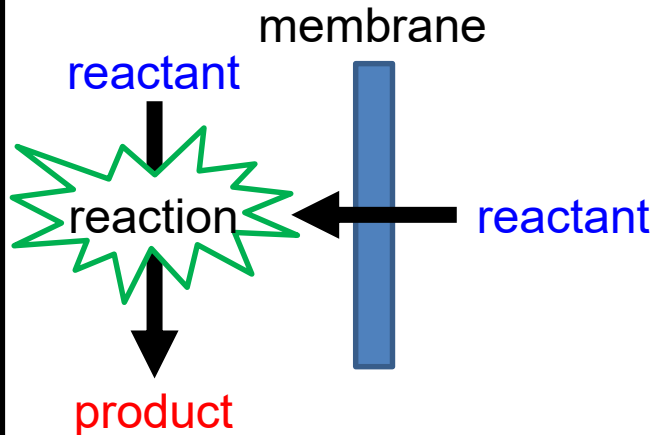


Application for hydrogen production<sup>1)</sup>

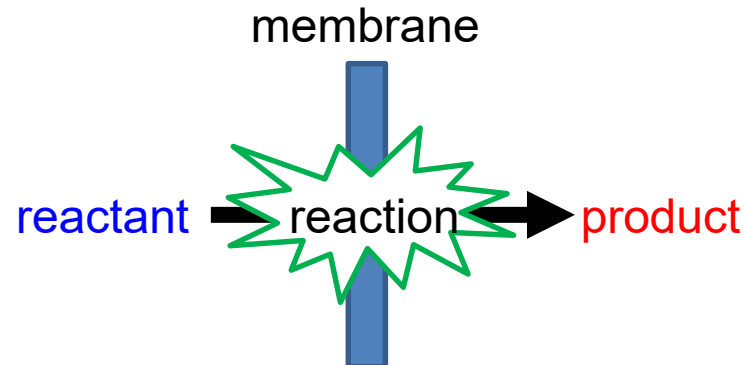


An extractor type membrane reactor has been applied for hydrogen production, dehydration etc.

## distributor



## contactor



1) E. Kikuchi, Sekyugakkaishi, 39(5) 301 (1996)

# アウトライン

- 二酸化炭素分離膜
  - ゼオライト膜
  - シリカ膜
  - 二酸化炭素吸収膜
- 膜反応器の概要
- 二酸化炭素供給型膜反応器

# 膜分離と二酸化炭素資源化

## ■ CO<sub>2</sub>メタネーションと膜分離

膜分離法 ... 膜面積に処理量が比例

→ 小規模分離系へも高効率で適用

+

メタネーション ...  $\text{CO}_2 + 4\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4 + 2\text{H}_2\text{O}$

$\Delta G = -165\text{KJ/mol}$

小規模排出源からの低濃度CO<sub>2</sub>の資源化

## ■ 分離・反応機構

➤ 膜分離の駆動力は、膜両側の濃度(分圧)差

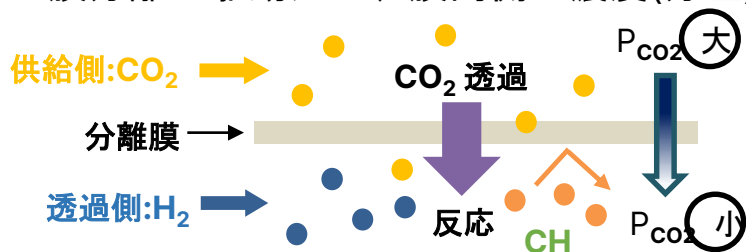


Fig. CO<sub>2</sub>の分離・反応のイメージ

膜両側のCO<sub>2</sub>分圧差の確保 → CO<sub>2</sub>透過性向上

## ■ シリカ膜

- Si-O-Siが主骨格
- 耐熱性、耐薬品性が高い
- 比較的安価
- 細孔径制御可能

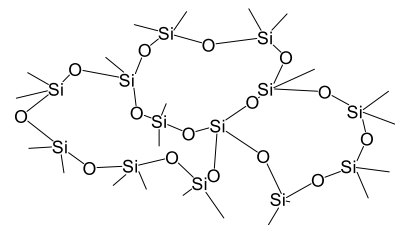


Fig. シリカネットワーク構造

## ■ 製膜-対向拡散CVD法

- 基材の両側からシリカ源と酸化剤を供給し、  
基材細孔内で反応蒸着させる手法

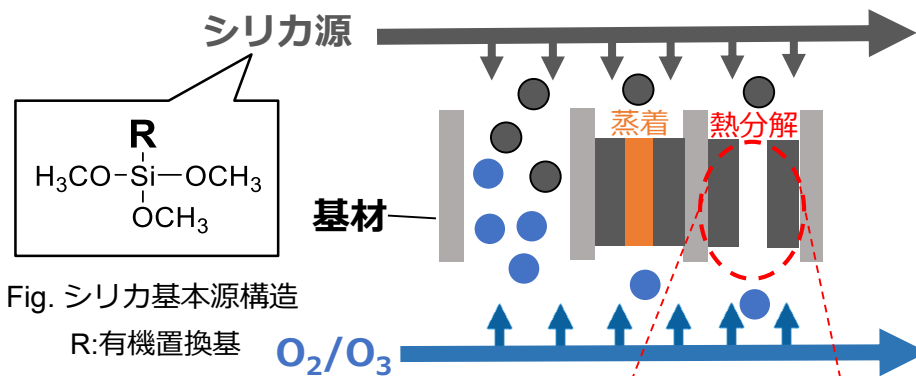
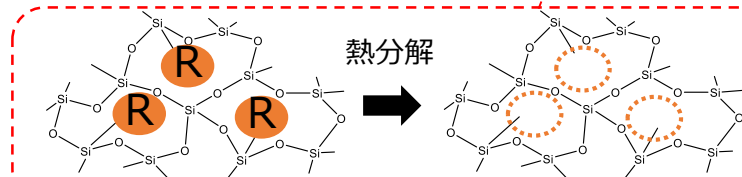


Fig. シリカ基本源構造

R: 有機置換基

Fig. 対向拡散CVD法のイメージ図

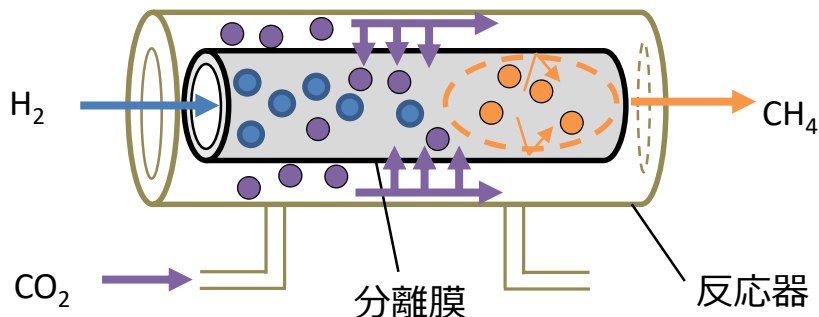




# 膜反応器と触媒配置

## ■ 膜反応器

- 反応と分離を同時に行う効率的なプロセス



- Distributor (分配) 型

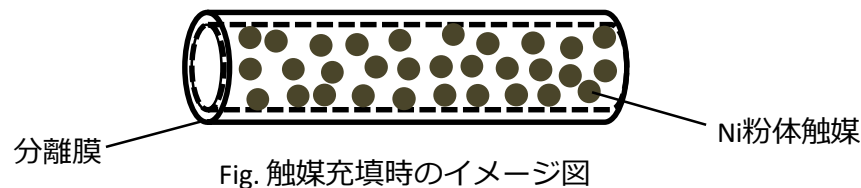
...膜の内外に異なる反応種を供給

- ✓ 膜の厚み方向に対してガスを分散供給  
→ 反応量の制御・熱暴走の抑制
- ✓ 研究例が少なく、学術的価値が高い

選択膜の適用による  
高濃度のプロダクト(CH<sub>4</sub>)生産

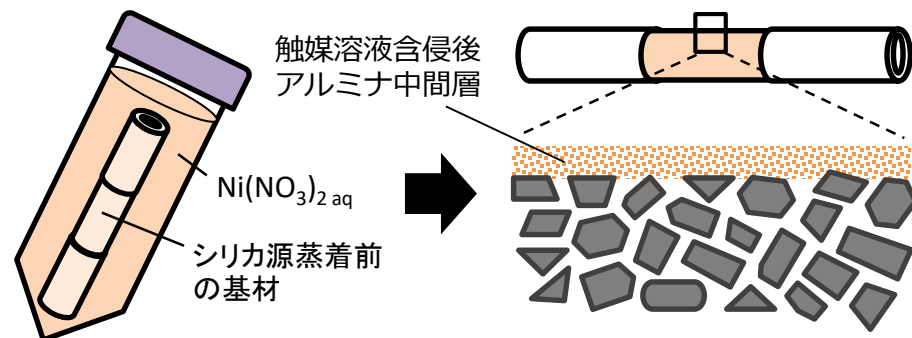
## ■ 触媒配置

- ① 粉体として調製し、膜内部へ充填する



- ・充填する金属重量の設定が容易
- ▲・触媒の熱伝導率が低く内部が加温されにくい
- ・圧力損失によるガスの逆拡散

- ② 触媒金属の水溶液を基材へ含侵させる



- ・分離層と触媒距離の短縮
- ・ハンドリングが容易
- ▲・充填に比べ、触媒量が少なくなる

# 反応器試験 / 対向拡散CVD 実験条件

## ■ 基材反応器試験条件

- シリカ蒸着前の多孔質アルミナ基材で反応器試験を行った

Table. 実験条件

CO <sub>2</sub> / N <sub>2</sub> 供給量	25 / 25 mL min <sup>-1</sup>
H <sub>2</sub> 供給量	100 mL min <sup>-1</sup>
触媒 -担持-	Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> aq 2.5M 理論担持量 0.25g
触媒 -充填-	Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> / γ-アルミナ(20wt%) Ni(CH <sub>3</sub> COCHCOCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> / γ-アルミナ(20wt%) 各2.0g
分析方法	ガスクロマトグラフィー
反応温度	300~400°C

## ■ 計算式

$$\text{Conversion}[\%] = \frac{F_{\text{CO}_2}^{\text{Feed}} - F_{\text{CO}_2}^{\text{in}} - F_{\text{CO}_2}^{\text{out}}}{F_{\text{CO}_2}^{\text{Feed}}} \times 100$$

$$\text{Carbon balance}[\%] = \frac{F_{\text{CH}_4}^{\text{in}} + F_{\text{CO}_2}^{\text{in}} + F_{\text{CO}}^{\text{in}}}{F_{\text{CO}_2}^{\text{Feed}} - F_{\text{CO}_2}^{\text{out}}} \times 100$$

## ■ CVD条件

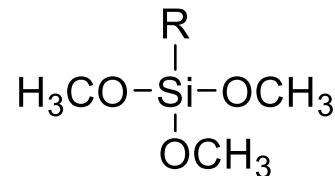


Fig. Precursor structure

製膜温度	450°C
シリカ源濃度	1.0, 2.0 mol m <sup>-3</sup>
キャリアガス	200 min <sup>-1</sup>
酸化剤流量	200 mL min <sup>-1</sup>
蒸着時間	5-60 min

Precursor	R
MTMOS	-CH <sub>3</sub>
DMDMOS	-CH <sub>3</sub> -CH <sub>3</sub>
HTMOS	-C <sub>6</sub> H <sub>13</sub>
PhTMOS	-C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>
DTMOS	-C <sub>10</sub> H <sub>21</sub>
APrTMOS	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> NH <sub>2</sub>

## ■ 計算式

ガス透過率

$$P_i = \frac{F_i}{A \times \Delta p}$$

$P$ : 透過率 [mol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> Pa<sup>-1</sup>]

$F_i$ : 透過速度 [mol s<sup>-1</sup>]

$A$ : 膜面積 [m<sup>2</sup>]

$\Delta p$ : 供給圧力 [Pa]

$a$ : 透過率比 [-]

理想選択係数

$$a_{i,j} = \frac{P_i}{P_j}$$

# アルミナ多孔質基材-担持-

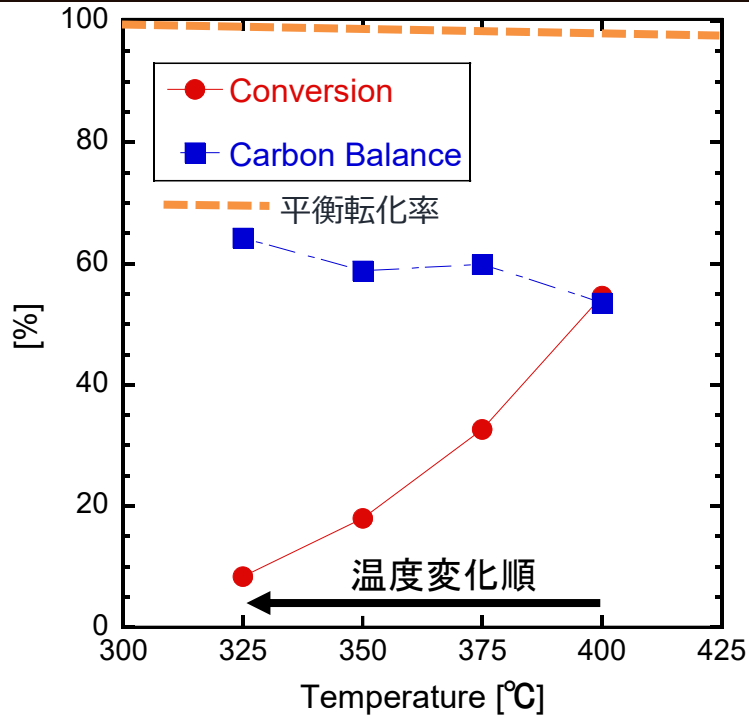


Fig. 2.5M Ni担持基材反応器試験  
転化率と反応温度の関係



Fig. 反応器試験後の基材

- ・ 二酸化炭素転化率は反応温度上昇と共に向上した。  
最大転化率は400°Cで**54%であった**。  
二酸化炭素メタン化反応は発熱反応なので、**触媒の反応律速と考えられる**。
- ・ 炭素収支は、温度上昇に対してわずかに減少した。  
温度上昇による**炭素析出の可能性**がある。

# アルミナ多孔質基材-充填-

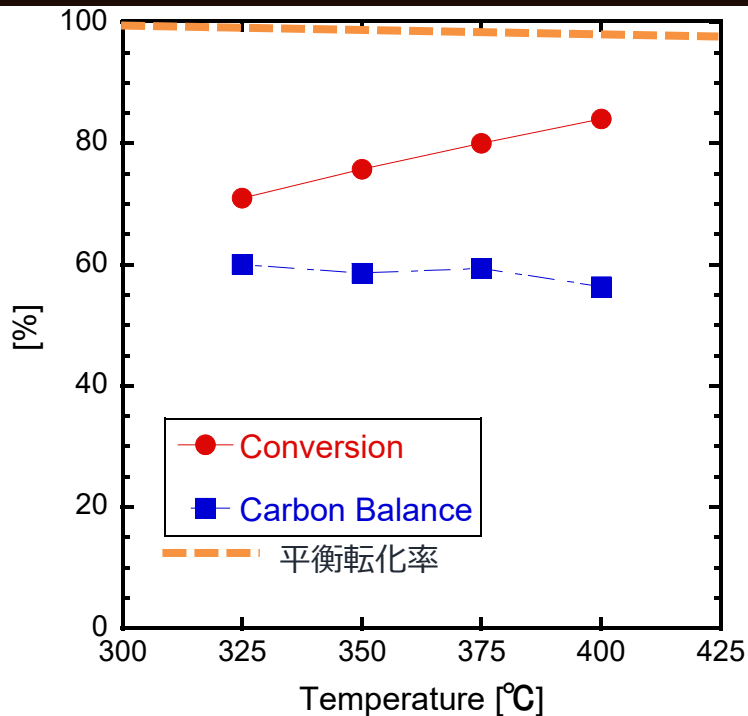


Fig.  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 / \gamma\text{-アルミナ}(20\text{wt}\%)$

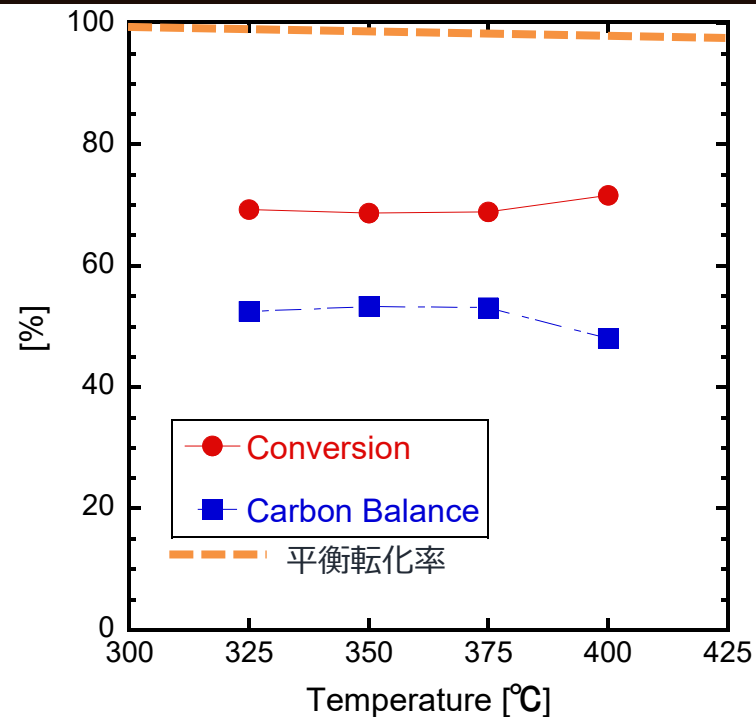


Fig.  $\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COCHCOCH}_3)_2 / \gamma\text{-アルミナ}(20\text{wt}\%)$

- ・ $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$ 触媒を用いた反応器試験において二酸化炭素転化率は反応温度上昇と共に向上し、**400°Cで最大83%**を得た。
- ・ $\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COCHCOCH}_3)_2$ 触媒では、二酸化炭素転化率は70%程度で一定。
- ・両試験において、GCにて触媒担持反応器試験では見られなかったCOの発生を確認。→**触媒量増加による副反応の可能性**

# 膜反応器～まとめ

- 充填型・担持型の2タイプの触媒配置による二酸化炭素メタン化基材反応器試験を行った。
- 担持型において、反応温度と転化率には触媒の反応律速による顕著な正の相関が見られた。
- 二酸化炭素吸収膜を用いることで、水素透過を抑制したい。