

論文内容の要旨

博士論文題目 Study of amine blending effects for the development of high-performance CO₂ adsorbents

(高性能 CO₂ 吸着剤開発のためのアミン混合効果の研究)

氏 名 Dao Sy Duc

(論文内容の要旨)

序論（第一章）では、CO₂ 分離回収貯留について、地球温暖化対策技術としての重要性を論じるとともに、実用化に向けた技術課題として、分離回収エネルギーの低減を挙げた。さらに、各種 CO₂ 分離回収法を比較し、分離回収エネルギーを大きく低減し得る手法として、アミン含浸吸着剤を用いた手法に着目した。多孔質担体の細孔内にアミン溶液を保持するアミン含浸吸着剤では、溶液をそのまま使用した際に付随するエネルギー損失の問題を解消可能である。しかし、その実用化には CO₂ 回収量の増大が望まれる。第二成分（アルコール、エーテルなど）の混合で、有意な性能向上効果が報告されているが、研究例は少なく、機構も未解明である。そこで、そのような効果の機構解明に取り組むべき研究テーマとして提起し、混合効果に基づく高性能アミン含浸 CO₂ 吸着剤の設計・開発を提案した。

第二章では、主剤として選定したアミン（テトラエチレンペンタミン、TEPA）をメソポーラスシリカ MSU-F に含浸した吸着剤 TEPA/MSU-F を合成し、基礎データを取得した。まず、分光学的手法で、CO₂ は TEPA のアミノ基と C-N 結合を形成し、カルバメートとして化学吸着していることを明らかにした。さらに、TEPA/MSU-F は吸着量に優れるものの、吸着熱が高く（高エネルギー損失）、CO₂ が脱離し難い（低回収量）ため、それらを改善する必要性を示した。

第三章では、TEPA に対し各種第二成分を混合し、その効果を検証した。強塩基、エーテル等を含む成分の中で、アルカノールアミン、特に、ジエタノールアミン（DEA）が最も高い性能向上効果を示した。本結果は、CO₂-アミン間の化学反応のみからは説明できず、温度依存・担持量依存のデータから、DEA の混合によって、拡散が顕著に改善され、アミノ基の利用効率が向上している

ことが明らかとなった。

第四章では、第二章で課題として提示した吸着熱と脱離性について、アミン混合の効果を検証した。その結果、TEPAにDEAを混合することで、CO₂吸着量を増大させ、かつ、吸着熱の低減が可能であることを実証した。さらに、拡散性改善の結果、TEPA-DEA/MSU-FではCO₂が脱離し易くなり、TEPA/MSU-Fに比べ大きく回収容量を増大することに成功した。

第五章では、応答局面法を用いて、含浸プロセスにおけるアミン混合比および溶媒量を最適化した。その結果、原料組成から吸着量を高精度で予測するモデルを得るとともに、吸着量 7 mmol/g (50°C, 100kPa) と極めて優れたアミン含浸 CO₂ 吸着剤を開発した。

結論（第六章）では、本研究の成果について総括した。本研究では、混合効果に基づく材料設計・性能予測モデルに基づき、分離回収エネルギーを大幅に低減し得る CO₂ 吸着剤の開発スキームを構築した。また、アミン混合による吸着性能向上の機構を明らかとした。

氏 名	Dao Sy Duc
-----	------------

(論文審査結果の要旨)

本博士論文は、火力発電所の燃焼排ガス等から CO_2 を分離回収する材料として、多孔質担体にアミンを含浸させた吸着剤の開発について論じたものであり、全六章から構成される。

CO_2 分離回収技術は、地球温暖化対策において不可欠なものとして、近年、その重要性が高まっている。本論文では、大規模排出源から CO_2 を分離回収し、地中に貯留する技術 (CO_2 分離回収貯留) を実用化するため最大の課題として、分離回収エネルギーの低減を挙げ、その解決を目指した材料開発研究を実施した。第一章では、そのような研究背景について述べ、分離回収エネルギーを大きく低減し得る手法として、多孔質担体の細孔内にアミン溶液を保持するアミン含浸吸着剤を用いた分離回収法に着目した。さらに、アミンに第二成分を混合することによる性能向上を見込み、そのような効果の機構解明とそれに基づく高性能 CO_2 吸着剤の設計・開発を提案した。第二章では、主剤として選定したアミン (テトラエチレンペンタミン、TEPA) をメソポーラスシリカ MSU-F に含浸担持した吸着剤 TEPA/MSU-F を合成し、基礎データを取得した。さらに、TEPA/MSU-F は吸着量に優れるものの、吸着熱が高く、 CO_2 が脱離し難いため、それらを改善する必要性を示した。第三章では、TEPA に対し各種第二成分を混合し、その効果を検証した。その結果、アルカノールアミンの混合によって、拡散が顕著に改善され、アミノ基の利用効率が向上することが明らかとなった。第四章では、TEPA にアルカノールアミンを混合することで、 CO_2 吸着量を増大し、かつ、吸着熱の低減が可能であることを実証した。さらに、拡散性の改善により、 CO_2 回収容量も増大することを示した。第五章では、応答局面法を用いて、含浸担持プロセスにおけるアミン混合比および溶媒量を最適化した。その結果、原料組成から吸着量を高精度で予測するモデルを構築した。第六章では、本研究の成果について総括した。

以上のように、本論文では、 CO_2 分離回収貯留を実用化するための課題である分離回収エネルギーの低減に大きく寄与し得る高性能アミン含浸 CO_2 吸着剤を開発した。さらに、アミン混合に基づく材料開発スキームを構築するととも

に、材料組成と性能との関係を解明した。以上より、審査委員一同は、本論文が関連の学術領域の発展に資するものと認め、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認めた。