

論文内容の要旨

博士論文題目 Development of Amine-Impregnated Adsorbents for
Carbon Dioxide Capture
(二酸化炭素回収のためのアミン含浸吸着剤の開発)

氏名 Vu Thi Quyen

(論文内容の要旨)

序論(第一章)では、地球温暖化対策技術として不可欠とされる CO₂ 分離回収技術開発の重要性を論じた。そのような中、アミン溶液を用いる既存回収法は成熟した技術ではあるが、溶液の揮発やエネルギー消費に伴うコストが問題であることを述べた。その解決手段として、吸着剤を用いた回収法が注目されており、特にシリカ等の多孔質材料の細孔内にアミン溶液を保持するアミン含浸吸着剤が有望であるとされている。しかし、その実用化には、CO₂ 回収量の増大や酸化劣化機構の解明と抑制といった課題が残る。そこで、本章では、そのような課題の解決に繋がる材料開発を研究テーマとして提起、提案した。

第二章では、CO₂ との反応サイトとなるアミノ基を高密度に有するアミン分子 TEPA (テトラエチレンペンタミン) を大容量担持可能なメソポーラスシリカ MSU-F に含浸した吸着剤 (TEPA/MSU-F) をベースに、その CO₂ 吸脱着性能を更に向上すべく、材料開発を行った。その際、TEPA とブレンドする化学種として、イミダゾール類に着目した。各種イミダゾール誘導体を比較検討した結果、適した置換基と酸塩基性を有するイミダゾール誘導体を TEPA とブレンドして含浸した MSU-F が優れた CO₂ 吸脱着性能を有することを見出し、その性能発現機構を、反応性および拡散性の両面から説明した。

第三章では、第二章で開発した高性能 CO₂ 吸着剤の主剤である TEPA の酸化劣化について検討した。対象ガスの O₂ 濃度や組成、温度、シリカの細孔特性等のパラメータに対し、吸着剤の酸化劣化がどのように依存するかを調査し、各種分析を実施した結果、酸化反応の代表的な中間体や生成物を見出し、劣化反応機構を提示した。これにより、酸化耐性に優れた改良アミンの分子設計が可能となった。

第四章では、第三章で検討したアミンの酸化劣化について、添加剤を使用して酸化抑制の可能性を検証した。種々の酸化防止剤を添加した TEPA 含浸吸着剤を合成して試験を行った結果、ラジカル捕捉剤として知られる既存の π 電子系化合物には酸化抑制効果は見られなかった。一方、硫黄系酸化防止剤では有意に劣化を抑制することができ、酸化劣化反応の中間体である有機過酸化物の分解が本抑制効果をもたらしていることが示唆された。

最終章（第五章）では、本研究の成果について総括した。本研究では、特定のイミダゾール類による反応および拡散促進効果によって、アミン含浸吸着剤の CO_2 分離回収性能が向上することを見出した。さらに、本材料系の実用化課題となり得る酸化劣化挙動を詳細に調べ、機構に関する知見を得るとともに、劣化抑制効果のある添加剤を探索し、耐久性を強化した吸着剤の開発に至った。

(論文審査結果の要旨)

地球温暖化対策技術として不可欠とされる排ガスからの CO₂ 分離回収において、多孔質材料にアミンを含浸させた吸着剤を用いる手法が期待されている。その実用化課題として、CO₂ 分離回収性能および耐酸化劣化性の向上を挙げ、材料の設計、合成および評価、機構解析の結果を論じた本論文は全五章から構成される。

第一章では、地球温暖化対策としての CO₂ 分離回収技術開発の重要性と研究開発動向について述べ、特に、所要エネルギーの低減が可能な吸着法に着目した。その中で、多孔質シリカの細孔内にアミンを保持するアミン含浸吸着剤が有望であるが、CO₂ 分離回収性能の更なる向上が望まれること、また、アミンの酸化劣化が問題となり得るが、それに関する知見と対策が不足していることを示し、これらに対する研究開発を提案した。第二章では、アミンを大容量担持可能なメソポーラスシリカに含浸した吸着剤をベースに材料開発を行った。アミンとブレンドする化学種として、耐久性の向上が期待できるイミダゾール類を選定し、適した置換基を有するイミダゾール誘導体においては、イミダゾール類とアミンの混合で CO₂ 吸脱着性能が顕著に向上することを見出し、その機構を説明した。第三章では、アミンの酸化劣化について検討し、酸化促進因子を抽出するとともに、酸化反応の代表的な中間体や生成物を見出し、反応機構を提示した。これにより、酸化劣化耐性に優れたアミンの設計が可能となった。第四章では、第三章までの知見に基づき、添加剤による酸化抑制の可能性を検証し、耐久性を強化した吸着剤の開発に至った。第五章では、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、地球温暖化対策に寄与し得る高性能アミン含浸 CO₂ 吸着剤を開発した。さらに、分離性能および耐久性向上に係る機構を解明した。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。