

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	STUDY OF CO2 PERMEATION AND SEPARATION THROUGH IONIC LIQUID MEMBRANE
著者(和文)	JindaratsameePinyarat
Author(English)	Pinyarat Jindaratsamee
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9283号, 授与年月日:2013年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:下山 裕介,伊東 章,Wiwut Tanthapanichakoon,関口 秀俊,谷口 泉,松本 秀行
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9283号, Conferred date:2013/9/25, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名	Jindaratsamee Pinyarat	
論文審査 審査員		氏名		職名	氏名	職名
	主査	下山 裕介		准教授	谷口 泉	准教授
	審査員	伊東 章		教授	松本 秀行	准教授
		Wiwut Tanthapanichakoon		教授		
関口 秀俊			教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Study of CO<sub>2</sub> permeation and separation through ionic liquid membrane」(イオン液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過ならびに分離に関する研究)と題し、英文で書かれ、以下の7章から成っている。

第1章「Introduction」では、本研究の背景として、CO<sub>2</sub> の分離回収技術の特徴ならびに既往の研究を述べた上で、本研究で提案したイオン液体含浸膜を利用した CO<sub>2</sub> の透過ならびに分離の特徴および期待される効果に言及している。さらに、本研究の目的と意義を明確にし、論文の構成を示している。

第2章「Preliminary study of CO<sub>2</sub> recovery process from air through amine / glycol liquid membranes」では、CO<sub>2</sub> の高溶解性を有するアミンとグリコール類との混合溶媒を用いた液体含浸膜による空気中からの CO<sub>2</sub> の分離回収を行っている。ここでは、液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過係数に対する混合溶媒中のアミン濃度、ならびにアミンの分子構造の依存性を把握している。さらに、ここで用いたアミン/グリコール膜は、CO<sub>2</sub> の透過性能について、最大10日間の耐久性があることを示している。

第3章「Effects of temperature and anion species on CO<sub>2</sub> permeability and CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> selectivity through ionic liquid membranes」では、まずイオン液体含浸膜への高分子支持膜の影響に着目し、イオン液体と親和性の高い polyvinylidene difluoride (PVDF) を選択することで、イオン液体ゲルが形成されることを示している。このように調製したイオン液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過係数ならびに CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 混合ガスの分離係数の測定を行い、温度依存性について検討している。CO<sub>2</sub> の透過係数は、温度上昇とともに増加することを示し、溶解-拡散理論に基づき、イオン液中の CO<sub>2</sub> の拡散係数の温度依存性が大きく影響しているためと考察している。また、CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 混合ガスの分離係数は、温度上昇とともに低下することを示している。イミダゾリウム系イオン液体中のアニオン種として、[BF<sub>4</sub>], [PF<sub>6</sub>], [Tf<sub>2</sub>N], [OTf], [dca] を用いた測定では、[Tf<sub>2</sub>N] アニオンの場合に最も高い CO<sub>2</sub> の透過係数 446 Barrer を示し、[PF<sub>6</sub>] アニオンの場合に最も低い透過係数であることを示している。溶解-拡散理論に基づき、[Tf<sub>2</sub>N] アニオンの場合には、CO<sub>2</sub> の溶解度が高く、[PF<sub>6</sub>] アニオンの場合は高粘性となり、CO<sub>2</sub> の拡散係数が低くなるためと考察している。また、CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> の分離係数では、[PF<sub>6</sub>] アニオンの場合に最も高い分離係数 87 であることを示している。

第4章「Separation of CO<sub>2</sub> from the CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixed gas through ionic liquid membranes at the high feed concentration」では、イミダゾリウム系イオン液体のアニオン種として [PF<sub>6</sub>], [Tf<sub>2</sub>N] を用いた液体含浸膜に対し、高濃度 CO<sub>2</sub> を含有した CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 混合ガスの分離性能における、混合ガス中の CO<sub>2</sub> 濃度、膜間圧力差、供給ガス流量の影響について検討している。混合ガス中の CO<sub>2</sub> 濃度が増加した場合、イオン液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過係数は低下することを示している。イオン液体中のアニオンを CO<sub>2</sub> 輸送のキャリアとした促進輸送では、高い CO<sub>2</sub> 濃度の場合、アニオンを中心としたクラスターサイズが大きくなり、CO<sub>2</sub> の拡散性が低下するためと考察している。さらに、膜間圧力差が高くなると、CO<sub>2</sub> の透過係数は低くなるが、CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> の分離係数は、ほぼ一定になると示している。CO<sub>2</sub> の透過係数ならびに分離係数に及ぼす供給ガス流量の影響は、小さいと述べている。

第5章「Effect of water vapor at feed and permeate streams on CO<sub>2</sub> permeabilities through ionic liquid membranes」では、イミダゾリウム系イオン液体のアニオン種として [PF<sub>6</sub>], [Tf<sub>2</sub>N] を用いた液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過係数に及ぼす、水蒸気添加の影響について検討している。水蒸気を添加することにより、イオン液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過係数は増大し、[Tf<sub>2</sub>N] アニオンの場合には、最大値である 956 Barrer となることを示している。さらに、温度上昇に伴う CO<sub>2</sub> の透過係数の増大幅も、高温条件下では大きくなると述べている。これについて、イオン液体含浸膜に水が加わる場合、イオン液体の粘度・密度が低下する物理的効果と、イオン液体中においてアニオンの水和構造が形成される化学的効果により、イオン液体における CO<sub>2</sub> の拡散性が大幅に向上するためと考察している。

第6章「Prediction of the membrane area and amount of CO<sub>2</sub> mole fraction at permeate for CO<sub>2</sub> separation process」では、第3～5章で得られた CO<sub>2</sub> の透過係数を用い、イオン液体含浸膜を利用した CO<sub>2</sub> の分離シミュレーションを行い、膜の透過側における CO<sub>2</sub> 濃度の予測値を示している。さらに、CO<sub>2</sub> 透過濃度の目的値に対するイオン液体含浸膜の膜面積を示している。

第7章「Summary of the research」では、本研究における成果を総括するとともに、今後の展望を述べている。

これを要するに、本論文は、イオン液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過係数について、温度やイオン液体種の影響、高濃度 CO<sub>2</sub> における操作因子の影響、ならびに水蒸気添加の影響を明らかにし、イオン液体含浸膜に対する CO<sub>2</sub> の透過に関する基礎的知見を得るとともに、CO<sub>2</sub> の透過分離シミュレーションを行うことで、CO<sub>2</sub> の分離回収技術としてのイオン液体含浸膜の有効性を明らかにしたものであり、工学上および工業上貢献するところが大きい。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として十分価値があるものと認められる。