

学位論文の審査結果の要旨

本論文では、水 H_2O と水同位体である D_2O のナノ細孔性カーボンへの吸着特性を評価し、その吸着特性から細孔内での H_2O と D_2O 分子のクラスターの形成・成長、吸着機構を明らかとした。さらに、ナノ細孔性カーボンの細孔内への H_2O と D_2O の吸脱着特性の違いを利用して H_2O と D_2O 分子を分離できることを明らかとした。

第1章では、水 H_2O と水同位体である D_2O の性質、水素結合、重水分離の従来技術、カーボン材料、吸着の原理からナノ細孔性カーボン材料への水蒸気吸着について概説した。

第2章では、異なる細孔径を有する疎水性カーボンへの水同位体 D_2O の吸着特性を評価し、ナノ細孔カーボンの細孔内での水クラスター形成に及ぼす水素結合の影響について検討した。ナノ細孔カーボンの細孔内での水クラスター形成に及ぼす水素結合の影響を検討するため、水素結合の強さの異なる D_2O と H_2O の吸着特性を比較した。吸着等温線を平衡圧力に対してプロットすると、 D_2O の吸着等温線は H_2O の吸着等温線に比べて低い圧力域へシフトする。この D_2O と H_2O の吸着特性の違いは、 D_2O と H_2O の水素結合の強さの違いを反映したものである。吸着等温線を相対圧に対してプロットすると、 D_2O の吸着等温線は H_2O の吸着等温線に比べ、高相対圧で等温線が立ち上がる。この現象は、異なる細孔径を有する疎水性カーボンにおいても同様に観測された。さらに、この吸着等温線の立ち上がりは、疎水性カーボンの細孔径が大きいほど高相対圧側へシフトすることも明らかとしている。この D_2O と H_2O の吸着特性の違いを、 D_2O と H_2O の水素結合の原子配置の対称性から考察し、水分子の分子会合体の成長の違いが関係していると提唱した。また、疎水性カーボンへの D_2O と H_2O の吸着特性に及ぼす温度の影響を検討したところ、温度上昇に伴い吸着等温線が高相対圧側にシフトすることが明らかとなった。この現象も、水クラスター形成における水素結合の安定性に起因していると考察した。

第3章では、第2章で明らかとなった D_2O と H_2O の吸着特性の違いを利用して希薄な D_2O の分離を検討した。吸着前の超純水に含まれる重水素濃度は143 ppmであり、吸脱着試験後の脱着水の重水素濃度は、活性炭素繊維A20（平均細孔径1.1 nm）の場合に平衡圧力が1.66 kPaのと

きに最小となり、重水素濃度は約131 ppmとなった。活性炭素繊維A25（平均細孔径1.5 nm）の場合には、平衡圧力が1.86 kPaのときに最小となり、重水素濃度は約125 ppmとなった。1回の吸着と脱着操作により、活性炭素繊維A20、A25の細孔内に重水素がそれぞれ12 ppm、18 ppm濃縮された。また、これは、大きな細孔径を有する活性炭素ほど水中の希薄なD₂Oの分離に有効であることを示している。これらの結果をもとに、活性炭の細孔内へのD₂O、H₂Oの吸着はD₂Oが優先的に吸着され、D₂O、H₂Oの脱着はH₂Oが優先的に脱着するモデルを提唱した。

第4章では、得られた結果を総括し、成果の工業的応用の可能性、D₂O分離のさらなる効率化の可能性について提案し総括した。

以上の研究成果は、細孔内への水の吸着機構の解明につながる有益な学術的情報を多数提供している。また、水同位体である重水D₂Oの産業応用が進む中、ナノ細孔性カーボンを利用したD₂Oの分離技術は、自然界に存在する希薄なD₂Oを低エネルギーで分離できる技術として工学的価値は高い。以上のことから、本博士論文は、博士（工学）の学位論文として十分な価値を有していると認める。

公表主要論文名

・ Yuji Ono, Ryusuke Futamura, Yoshiyuki Hattori, Shigenori Utsumi, Toshio Sakai, Katsumi Kaneko “Isotope effect on water adsorption on hydrophobic carbons of different nanoporosities” Carbon, Vol. 119, pp. 251-256 (2017)

・ Yuji Ono, Ryusuke Futamura, Yoshiyuki Hattori, Toshio Sakai, Katsumi Kaneko, “Adsorption-desorption mediated separation of low concentrated D₂O from water with hydrophobic activated carbon fiber” J. Colloid Interface Sci., Vol. 508, pp. 14-17 (2017)