

## 博士論文審査の結果の要旨

氏名	吉川 靖矩
学位名	博士（工学）
学位番号	甲 第 761 号
論文題目	活性炭における細孔発達と分子吸着の構造論
論文審査委員	主査 手嶋 勝弥 是津 信行 樽田 誠一 田中 秀樹 西原 洋知 （東北大学）

### （博士論文審査の結果の要旨）

本学位論文では、先進国において水道水の浄水時の副産物として発生するクロロホルムに着目し、繊維状活性炭へのクロロホルム分子吸着における吸着メカニズムを明らかにすることを目的とした。特に、活性炭の水蒸気賦活による細孔発達メカニズム、ならびにクロロホルム分子吸着のメカニズムを構造論的視点から丁寧にまとめた。

第 1 章では、世界の大气・水質汚染問題とその解決策としての活性炭利用を概説した。また、活性炭細孔の構造制御や構造評価手法を示すとともに、本研究の意義を記した。

第 2 章では、水蒸気再賦活により、賦活度の異なる繊維状活性炭の細孔および細孔壁の構造を評価し、活性炭の水蒸気再賦活過程の細孔構造変化を調査した。これまでは、水蒸気賦活は繊維表面で進行すると考えられてきたが、本研究にて表面だけでなく、内側にもマイクロ孔が形成されることを明らかにした。特に、賦活は結晶子のエッジ部分で生じると考えられてきた。しかし今回、グラフェン様シートが 1 層ずつ分解し、結晶子の面内サイズを変えずに積層数を減少させるように、細孔が発達することを各種評価結果から導出した。なお、この細孔発達メカニズムの理解を深めるために、新規手法として細孔径分布のデコンボリューション解析を用いた。この結果は、細孔容積や比表面積が大きく、均一な細孔径をもつマイクロ孔活性炭の作製の一助となることが期待できる。

第 3 章では、異なる充填率でクロロホルム分子を前吸着させた繊維状活性炭の細孔構造を評価し、その吸着進行に伴う吸着メカニズムを議論した。具体的には、充填率を変化させて測定した N<sub>2</sub> 吸着量実験から、ブロッキング効果をもつ狭い凸壁サイトの存在およびその位置を求めた。さらに、電子動径分布関数解析を用い、低相対圧でマイクロ孔吸着したクロロホルム分子は、凸壁サイト付近で 5 分子程度から成る環状クラスターを形成することを導いた。凸壁サイトは強い吸着場をもつため、希薄なクロロホルムを効率的に濃縮できる可能性を見いだした。

第 4 章では、得られた結果を総括し、結論と今後の展望についても述べた。

以上の研究により、活性炭の水蒸気賦活による細孔発達メカニズム、ならびにクロロホルム分子吸着における吸着メカニズムに対して、構造論的視点から詳細に議論できた。今後、更なる高度化に対しては、活性炭の細孔構造を精密に制御しなければならない。そのためには、他の前駆体から作製された活性炭や CO<sub>2</sub> 賦活に対しても、今回得た細孔発達メカニズムを広く適用することが重要となる。また、凸壁サイトの生成やその位置制御も不可避な技術となる。このように、本博士論文で研究した活性炭水蒸気賦活による細孔発達メカニズムおよびクロロホルム吸着メカニズムに対する構造論的知見は、今後の活性炭細孔構造制御の高度化に多大な役割を果たすと期待できる。本研究は、活性炭の構造論において極めて貴重な学術的・工学的情報を多数与え、材料科学の分野に大きく貢献すると期待できる。本博士論文は、博士(工学)の学位論文として十分な価値をもつと認める。

### （公表主要論文名）

- ① Yasunori Yoshikawa, Katsuya Teshima, Ryusuke Futamura, Hideki Tanaka, Taku Iiyama, Katsumi

Kaneko, Structural adsorption mechanism of chloroform in narrow micropores of pitch-based activated carbon fibres, *Carbon*, Vol.171, pp.681-688 (2021).

- ② Yasunori Yoshikawa, Katsuya Teshima, Ryusuke Futamura, Hideki Tanaka, Alexander V. Neimark, Katsumi Kaneko, Structural mechanism of reactivation with steam of pitch-based activated carbon fibers, *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol.578, pp.422-430 (2020).