

博士論文の内容の要旨

氏名	吉川 靖矩
学位名	博士（工学）
学位授与年月日	2021年3月20日
論文題目	活性炭における細孔発達と分子吸着の構造論

(博士論文の内容の要旨)

活性炭は高比表面積をもつことや低コストで製造できること、主に炭素から成ることによる安全性から幅広い分野で用いられている。特に、活性炭細孔による吸着現象を用いて汚染物質を細孔内に取り込むことができるため、大気や水の浄化に利用されている。汚染物質の特性は多種多様であるが、活性炭の細孔構造を制御することで特定の汚染物質の除去効率を上昇させることができるため、活性炭の細孔構造制御に関する研究が多く報告されている。しかし、活性炭の構造は、規則性をもつナノメートルサイズのユニットがランダムに配向することで成り立っている。つまり巨視的には不規則な構造をもつため、構造の詳細な理解が困難であることから、活性炭細孔および細孔壁の構造は未だ十分には理解されていない。そのため、活性炭細孔構造の制御過程における細孔発達メカニズムや汚染物質の吸着過程における吸着メカニズムへの理解も十分には進んでいない。本研究では、先進国において水道水浄水の副生成物として発生し、発がん性が疑われるとともに、活性炭を用いた水道水浄水性能を制限しているクロロホルムに着目した。活性炭の細孔構造を構造論的に評価することで、繊維状活性炭の水蒸気賦活における細孔発達メカニズム、および繊維状活性炭へのクロロホルム吸着における吸着メカニズムについて検討を行った。

本論文は4章で構成されている。

第1章では、本研究の背景として、世界の大气、水質汚染問題とその解決策としての活性炭の利用について説明した。また、活性炭は不規則な構造をもつため、細孔構造制御における細孔発達メカニズムや汚染物質吸着における吸着メカニズムの構造論的な理解が十分でないことを示した。また、活性炭細孔の構造制御、および構造評価手法について示すとともに、本研究の意義、目的および本論文の構成を述べた。

第2章では、水蒸気再賦活による賦活度の異なる繊維状活性炭の活性炭細孔および細孔壁の構造評価を行い、活性炭の水蒸気再賦活過程における細孔構造の変化について調査した。これまで水蒸気賦活は繊維表面で進行すると考えられていたが、賦活による重量変化と体積変化の比較プロットを用いることで、賦活温度 1073 K 以上では繊維表面だけでなく内側にもマイクロ孔が生成されることを示した。また、水蒸気賦活は結晶子のエッジ部で起こると考えられてきたが、水蒸気賦活は結晶子を構成するグラフェン様シートが1層ずつガス化されることで進行し、結晶子の面内サイズを変えずに積層枚数を減少させることで細孔が発達することを示した。さらに、上記の細孔発達メカニズムをサポートするために、細孔構造評価の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。水蒸気賦活による細孔発達メカニズムを明らかにしたことにより、今後、細孔容積、比表面積が大きく、均一な細孔径を有するマイクロ孔性活性炭の作製が期待される。

第3章では、異なる充填率でクロロホルムを前吸着させた繊維状活性炭の細孔構造を評価することで、クロロホルムの吸着進行に伴う吸着メカニズムを調査した。異なる充填率でクロロホルムを吸着させた繊維状活性炭の N_2 吸着量の変化から、ブロッキング効果を有する狭い凸壁サイトの存在および細孔入口に対する凸壁サイトの相対的な位置について示した。また、電子動径分布関数解析を用いて、低相対圧でマイクロ孔に吸着されたクロロホルム分子は、凸壁サイト付近で5分子程度のクロロホルム分子から成る環状クラスターを形成していることを示した。凸壁サイトは強い吸着場を持つことから、希薄なクロロホルムの効率的な吸着を目的として細孔入口付近に凸壁サイトを生成することで、活性炭による希薄なクロロホルム除去能の高性能化が期待される。

第4章では、本研究を総括し、結論および今後の展望について述べた。

本研究により、活性炭の水蒸気賦活による細孔発達メカニズムおよびクロロホルム吸着における吸着メカニズムに対する構造論的な知見が得られた。今後、さらに高度に細孔構造を制御された活性炭を調整するためには、今回得られた細孔発達メカニズムを広く適用するために、他前駆体から得られた活性炭および CO_2 賦活に対して本アプローチを適用することが必要となる。また、

クロロホルム吸着能の高度化のため、凸壁サイトの生成およびサイト生成位置の制御が必要となる。本研究で得られた活性炭の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における吸着メカニズムに対する構造論的な知見は、今後の活性炭細孔構造制御の高度化において重要な役割をもつと考えられる。