

博士論文審査の結果の要旨

氏名	杉山 広忠
学位名	博士（工学）
学位番号	甲 第 770 号
論文題目	フッ素化活性炭素繊維の二酸化炭素および水素同位体吸着挙動
論文審査委員	主査 服部 義之 宇佐美久尚 田中 秀樹 加納 博文（千葉大学大学院）

（博士論文審査の結果の要旨）

本論文は、活性炭素繊維（ACF）とフッ素ガスとの反応によるフッ素化 ACF（F-ACF）の創製と、F-ACF の二酸化炭素 CO_2 および水素同位体 H_2/D_2 の吸着挙動に関する研究をまとめたものである。

第 1 章では炭素材料の構造と物性の特徴、および炭素材料のフッ素化などについてまとめている。炭素原子の取る電子配置の多様性が、炭素材料の構造と物性に多様性をもたらすことを系統的にまとめている。またフッ素原子およびフッ素分子の特徴についてまとめ、フッ素化学が化学修飾手法として有用であることを示している。さらに、フッ素ガスと炭素材料の反応条件を制御することにより、多彩な構造および物性を示すフッ素化炭素材料が生成することを示している。

第 2 章では本学位論文で用いている実験手法に関して、その原理および解析手法を示している。生成物の結晶構造および表面化学状態の分析に必要な、X線構造解析（XRD）および光電子分光法（XPS）に関して、その測定原理を記載している。また、吸着等温線の測定原理と解析手法に関してまとめている。さらに、量子分子篩効果および気体分離係数の算出に関する理論についても簡潔にまとめている。

第 3 章では、ACF のフッ素化、F-ACF の細孔構造および F-ACF の CO_2 吸着特性について論じている。ACF を 298-523 K の温度範囲でフッ素化し、得られた F-ACF の構造と C-F 結合の性質に関して XRD および XPS を用いて詳細に解析を行っている。また F-ACF の細孔構造に関して、77 K における N_2 吸着等温線によって詳細に解析している。さらに F-ACF の 273 K での CO_2 吸着特性に関しても評価している。その結果、F-ACF の細孔構造がフッ素化温度により変化することを示し、その細孔構造を反映して F-ACF が特異な吸着挙動（ N_2 および CO_2 の吸脱着等温線におけるヒステリシスループの観測など）を示すことを明らかにした。中でも、ACF を 298 K でフッ素化した F-ACF では、未反応の ACF に比べ CO_2 吸着量が増加する現象を見出したことは特筆すべき成果と言える。

第 4 章では F-ACF の 77 K での H_2/D_2 吸脱着挙動と、量子分子篩効果に関して論じている。フッ素化温度を選択し、F-ACF の細孔構造を制御することにより、特異な H_2/D_2 吸脱着特性が発現することを示している。特に、373 K でフッ素化した F-ACF が、顕著な量子分子篩効果が発現することを見出した結果は、特筆すべき成果といえる。また優れた量子分子篩効果を示す吸着剤を創製した点で、学術的意義に加えて効率的な H_2/D_2 分離材料の開発にも貢献する成果と言える。

第 5 章は、総括を記載している。F-ACF に関して、構造、細孔構造、気体吸着特性、および量子分子篩効果について、得られた成果を簡潔にまとめている。

本論文は、フッ素化手法を駆使することにより F-ACF を創製し、フッ素化による細孔構造制御が CO_2 吸着能および水素同位体分離能の向上をもたらすことを示している。この結果は、フッ素化学による ACF の構造と物性制御が、優れたガス貯蔵能およびガス分離能といった機能性の発現をもたらすことを示した点で学術的に優れた価値を有している。以上のことから、本論文は学位論文として十分に認められるものと判断した。

（公表主要論文名）

1. Hironori Sugiyama, Yoshiyuki Hattori, “Selective and enhanced CO_2 adsorption on fluorinated activated carbon fibers”, *Chemical Physics Letters*, 758 (2020) 137909.（2020 年 11 月発行に掲載）
2. Hironori Sugiyama, Yoshiyuki Hattori, “Quantum-molecular Sieving of Hydrogen Isotopes in Fluorinated Carbon Nanopores” *Chemistry Letters*, **2021**, 50, 1460–1463.（2021 年 8 月発行に掲載）