

博士論文審査の結果の要旨

氏名	北野 宏樹
学位名	博士 (工学)
学位番号	甲 第 741 号
論文題目	ナノカーボンの水処理技術への応用と機能発現機構に関する研究
論文審査委員	主査 竹内 健司 林 卓哉 村松 寛之 清野 竜太郎 Josue Ortiz-Medina (Faculty of Engineering, Panamerican University, México)

(博士論文審査の結果の要旨)

炭素は新しい文明を拓くトリガーの役をその時代時代に登場した新規炭素体が果たしてきた。特に、20 世紀後半、さまざまな新規炭素体が登場し、人類の文明の歴史上もっとも華やかな先端技術時代を拓くことに貢献した。カーボンファイバーとグラファイトファイバー、グラファイト層間化合物、リチウムイオン電池用負極炭素、人造ダイヤモンド、ダイヤモンドライクカーボンなどがあげられる。それまでの縁の下の力持ち的存在から時代のスポットライトを浴びるスター材料の名声を与えられ、人類の文明の発展に貢献した。そしてこのナノカーボンこそ、歴史がそうであったように 21 世紀のイノベーションを実現できると期待されている。当研究ではそのイノベティブなナノカーボンに着目し、応用について研究展開しているが、最重要の課題はいかなる応用で社会貢献を目指すかである。ナノカーボン応用によるナノ物質の産業振興とバックキャストによる世界貢献であり、有効な応用につながるナノカーボン応用の POC (Proof of Concept) の提示がこの研究のゴールである。ナノカーボンの社会実装を目指した POC を確立するべく社会貢献を果たす応用テーマ探索は、バックキャストで考察した。今後 10 年における世界的課題は様々考えられるが、注目したいのは水問題である。近年、人口爆発が進み、生活活動などにより水不足が深刻化している。経済協力開発機構の報告によると、2000 年時点の世界の水需要は 2000 年から 2050 年の間に、主に製造業の工業用水、発電、生活用水の増加により、深刻な水不足に見舞われる可能性もあると予想されている。経済発展に必要な工業用水や資源開発用水の確保に加えて、資源産出時の排水処理や水汚染問題は国際的な環境問題であり、循環して利用する新技術が求められている。このようなバックキャストの考察と、そしてナノカーボンの有する応用上のポテンシャルから、造水技術への応用展開が研究のゴールに設定した場合に極めてイノベティブな研究テーマとなり、大きな期待が可能と判断した。

そこで本研究では、ナノカーボンを造水技術に展開させることを目的に以下の二点の研究を行った。まず第一に、ダイヤモンドライクカーボン (DLC) 膜をベースとした全炭素体逆浸透 (RO) 膜である。過去、同様の挑戦があったものの RO 膜としての性能は不十分であった。そこで今回、ナノカーボン膜中のナノ構造を制御し、RO 膜に使用可能なナノカーボン膜の生成および RO 膜への応用の試みを推進した。逆浸透圧に耐える機械的機能と分子レベルの細孔制御、透水機能と構造の相関などが骨子のテーマである。これまでの我々グループのナノカーボン構造制御の高いレベルの研究ノウハウによって、RO 膜として期待できるレベルの全炭素製 RO 膜を実現し、所期の目標を達成することができた。具体的には、ナノカーボン膜中のアモルファスカーボン構造に窒素などの原子を導入することで、柔軟性がありかつ高い分離機能を示すナノカーボン分離膜の開発が出来た。その分離特性は、塩除去率 96% を超え、透水流束が約 $22.9 \text{ L} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{MPa}^{-1}$ (NaCl 濃度: 0.2 wt%) となり、過去のカーボンベース分離膜の中でも特にすぐれた特性を示した。また、構造解析による高性能発現のメカニズムの解明、導入する窒素量の最適化、水圧による膜圧縮による性能向上など、現在のポリマーベース RO 膜のいくつかの欠点を克服する可能性を備えた、高機能分離膜の開発が出来た。

第 2 の研究テーマは、実用化が可能な水技術での貢献を目指したもので、ナノカーボンの一つ、カーボンナノチューブ (CNT) を一般的な原水スパーサー材料のポリプロピレン (PP) 材と複合化して得られる CNTs / PP 複合原水スパーサーの開発研究である。実際の海水淡水化は RO 膜をス

パイラル上に捲回していわゆるモジュールを構成し、逆浸透圧を印可して海水淡水化が実行される。その際の主たる膜の故障原因は、膜表面に水に含まれる有機物や細菌等の汚れ成分が付着することを意味するファウリングである。一般的にこのファウラント堆積は透水性や塩排除性の変化をもたらす、またファウラント堆積の洗浄に際し使用される塩素系薬剤は膜の劣化をもたらすのみならず、脱塩後の排水における薬品含有による海洋汚染が危惧され出した。この膜表面のファウラントの堆積は膜間に装填される原水スペーサーへのファウラント付着とも関係している。耐ファウリング性を有するスペーサー開発は、海水淡水化モジュール開発において重要なテーマであり、多くの研究蓄積がなされたものの十分な成果には至っていない。そこで、耐ファウリング性を有する原水用スペーサーとしてCNTとPPを複合化させた原水スペーサーを開発し、耐ファウリング性で優れた機能の実現実証、その優れた機能発現の機構を明らかにした。このCNTs / PP 複合原水スペーサーは実用上も直ちに採用可能な優れた技術であることを示した。

(公表主要論文名)

- ① Hiroki Kitano, Kenji Takeuchi, Josue Ortiz-Medina, Isamu Ito, Aaron Morelos-Gomez, Rodolfo Cruz-Silva, Taiki Yokokawa, Mauricio Terrones, Akio Yamaguchi, Takuya Hayashi, Morinobu Endo, Enhanced desalination performance in compacted carbon-based reverse osmosis membranes, *Nanoscale Advances* (Accepted 28th June 2020, in press).
- ② Hiroki Kitano, Kenji Takeuchi, Josue Ortiz-Medina, Rodolfo Cruz-Silva, Aaron Morelos-Gomez, Moeka Fujii, Michiko Obata, Ayaka Yamanaka, Shogo Tejima, Masatsugu Fujishige, Noboru Akuzawa, Akio Yamaguchi, Morinobu Endo, Enhanced Antifouling Feed Spacer Made from a Carbon Nanotube-Polypropylene Nanocomposite, *ACS Omega*, 4(13), 15496-15503 (2019).
- ③ Josue Ortiz-Medina, Hiroki Kitano, Aaron Morelos-Gomez, Zhipeng Wang, Takumi Araki, Cheon-Soo Kang, Takuya Hayashi, Kenji Takeuchi, Takeyuki Kawaguchi, Akihiko Tanioka, Rodolfo Cruz-Silva, Mauricio Terrones, Morinobu Endo, Nanostructured carbon-based membranes: nitrogen doping effects on reverse osmosis performance, *NPG Asia Materials*, 8, e258 (2016).