

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 斐 尚大

本論文は「Study on Preparation, Characterization and Application of Activated Carbon Membrane with Carbon Whiskers (カーボンウィスカーを有する活性炭膜の製法、特性解析および応用に関する研究)」と題し、ろ過機能と吸着機能を併せ持ち、さらに外表面上にカーボンウィスカー（微細で微少な炭素繊維）を付加することによって膜の目詰まりを軽減できる新しい水処理用の機能性炭素膜を提案し、その製法、構造及び分離性能、目詰まり抑制機構、および浄水処理への応用を述べたもので、6章から成る。

第1章は序論であり、わが国において一般的に行われている浄水処理における膜分離と活性炭吸着の役割分担を整理するとともに、原水に含まれる汚濁物質のサイズが広範囲に渡ることから、その一括処理が不可能である現状を述べている。その上で、本論文で提案する新しい膜が、コンパクトな処理装置による一括処理を可能とするものであることを示している。そして、本論文の目的は、その新しい膜の製法の確立と構造評価、ならびにそのろ過および吸着機能の評価であるとし、本論文の構成を述べている。

第2章では、ポリマー微粒子を凝集・炭化させて調製した活性炭膜について、その製法、構造、吸着および水透過の機能について述べている。ここで調製された膜は、溶存有機物を吸着する機能を持った活性炭膜であり、本論文で最終的に調製するカーボンウィスカーを有する活性炭膜の基礎となるものである。ポリ塩化ビニリデンとポリ塩化ビニルの混合微粒子を多孔質セラミック担体上に凝集・炭化させて膜モジュール化する製法には前例がなく、この製法によって市販活性炭と同様の高い吸着容量と実用的な水透過機能を併せ持った活性炭膜の調製に成功している。また、構成微粒子の粒子径が $0.1\mu\text{m}$ 程度と活性炭等と比較して極端に小さいことから、瞬時吸脱着とみなせる操作が可能であることも、この活性炭膜の大きな長所のひとつであることを明らかにしている。

第3章では、CVD (Chemical Vapor Deposition) 法により多孔質セラミック担体上にカーボンウィスカーを均一に形成させる製法と、そのようにして調製されたカーボンウィスカー層の水処理における効果について述べている。ここでの製法は、カーボンウィスカーの核形成前駆体として硫酸鉄を用い、炭素源としてメタンを用いることを特徴としている。また、円管状の多孔質セラミック担体を最適な回転数で回転させながら、メタンの供給方向をも一定時間ごとに逆転させるなどの実験的工夫を重ねて、膜モジュールとして水処理に使える形状の担体に均一なカーボンウィスカー層を調製することに成功している。さらに、このように調製したカーボンウィスカー層は、懸濁微粒子が膜表面に付着することを抑制し、逆洗によって容易に剥離させる効果があることを実験的に明らかにしている。

第4章では、第2章で述べた活性炭膜と第3章で述べたカーボンウィスカーを組み合わせて調製したカーボンウィスカーを有する活性炭膜について、その製法、構造、ろ過および吸着の機能について述べている。ここで調製された膜は、円管状の多孔質セラミック担体の外表面上にポリ塩化ビニリデンとポリ塩化ビニルの混合微粒子を凝集・炭化させて活性炭層が形成され、さらにその上にCVDによってカーボンウィスカー層が形成された多重構造となっている。この構造に関して、膜細孔径や表面開孔率を定量的に評価すると共に、ポリ塩化ビニリデン/ポリ塩化ビニル比が小さいほど、カーボンウィスカーの直径は大きく膜細孔径は小さいことを実験的に明らかにして、これらを制御した調製が可能であることを示している。また、ろ過の機能については、ポリメチルメタクリレート粒子懸濁

液を用いたろ過実験により、カーボンウイスキーが粒子閉塞による流束の低下を抑制する効果を有することを明らかにしている。さらに、観察された流束低下抑制効果を既存の数値モデルを組合せて定量的に解析している。具体的には、ここで調製された膜は外表面上に直径 $5\mu\text{m}$ 程度のくぼみが散在し、このくぼみへの粒子閉塞が流束の低下の原因となるが、その閉塞がカーボンウイスキーの存在により緩和されると考えるのが妥当であろうと結論づけている。

第5章では、第4章に述べたカーボンウイスキーを有する活性炭膜を用いて、古い水道配管から流出する、いわゆる「赤水」の透過実験を行い、ここで開発された膜の実用性について言及している。この「赤水」には、「赤さび」等が微粒子懸濁物として含まれるだけでなく、水道原水中に存在する天然物由来の溶存態有機物 (Natural Organic Matter、NOM) が含まれる。このような「赤水」の透過における流束の低下には、第4章に述べた粒子閉塞の寄与は小さく、NOMの吸着による寄与が支配的であることを定量的に示した上で、後者による流束低下の抑制にもカーボンウイスキーが効果を有することを示している。具体的には、NOMの吸着量と膜透過抵抗の関係を詳細に検討し、カーボンウイスキーの表面にNOMが吸着されることによって流束低下が起こるまでの時間が長くなる効果を定量的に明らかにしている。

第6章には、各章のまとめと本論文の成果を整理している。

以上を要するに本論文は、懸濁態と溶存態の汚濁物質の双方を比較的低濃度で含む原水を吸着機能と目詰まり抑制機能を付加した膜で一括処理するという新しい水処理法を提案し、このことを可能にする新しい機能性炭素膜を開発するとともに、その処理機能を明らかにしており、工学的に高い価値を有し化学システム工学への貢献は大きいものと考えられる。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。