

審査の結果の要旨

氏名 高橋勇介

本論文は、「Preparation and Gas Adsorption Properties of Edge-rich Carbon Nanofibers (エッジリッチなカーボンナノファイバーの調製とガス吸着特性)」と題し、ポリエチレングリコール (PEG) 熱分解法によるエッジリッチなカーボンナノファイバー (CNF) の合成手法の確立、成長機構の解明、ならびにそのガス吸着特性の解明までを一貫して行なったものであり、全5章からなる。

第1章は緒論であり、まずカーボンナノチューブならびに種々の CNF に関する既往の研究を広範囲に調査した上で、Platelet CNF (PCNF)、Cup-stacked CNF (CSCNF)、Herring-bone CNF (HBCNF) などの代表的なエッジリッチな CNF の構造的特徴、材料特性、応用法の現状と課題を整理している。その結果、エッジリッチな CNF は優れた官能基担体として吸着剤や触媒等への応用が期待されているものの、現状の主要な合成法である化学気相成長法 (CVD 法) で合成される CNF よりも、より径の小さい CNF を合成することが望まれると結論づけ、その有望な方法のひとつとして PEG 熱分解法に着目している。しかし、PEG 熱分解法については種々のエッジリッチな CNF の詳細な構造や選択的合成法などが未だに明らかとなっていないことから、本論文の目的を、PEG 熱分解法によるエッジリッチな CNF の合成手法の確立、成長機構の解明、そして応用の基礎となるガス吸着特性の解明であるとし、本論文の構成を示している。

第2章では、PEG 熱分解法において、PCNF、CSCNF および HBCNF の3種のエッジリッチな CNF の選択的合成法を実験的に確立させるとともに、本法によって合成された CNF の構造的特性を詳細に検討している。その結果、選択的合成の支配因子が、PEG と塩化ニッケルの重量比、PEG 水溶液の乾燥時間、乾燥後の冷却の有無、CNF 成長時の昇温速度の4項目であり、これらを適切に組み合わせることで3種のエッジリッチな CNF の選択的合成が可能であることを示している。さらに、本法によって合成された PCNF および CSCNF は、CVD 法等の従来法で合成された CNF よりも小さい径を持つことを示し、本法は複数のエッジリッチな CNF を簡便に合成することが可能であることから、より応用分野の広い CNF を提供することのできる有望な合成法と結論づけている。

第3章では、PEG 熱分解法における CNF の成長機構の解明を目的として、触媒粒子の形成過程を詳細に検討している。その結果、本法においては基板上に堆積するアモルファスカーボンが触媒粒子の形成過程に重要な役割を有することを見出し、この点が本法と CVD 法との根本的な相違点であると結論づけている。具体的には、本法では昇温に伴って触媒粒子は凝集して径が大きくなるが、低温段階 (400~600°C) で PEG の熱分解により

発生する気体に含まれる炭素が基板上にアモルファスカーボンとして堆積することにより、当該凝集を抑制することを見出し、昇温速度、触媒粒子径、アモルファスカーボン堆積量の関係に関して定量的な考察を加えている。また、本法における PCNF の成長機構は、CVD 法で一般的な 1 つの触媒粒子が先端となって 1 本の CNF が成長する、いわゆる「先端成長機構」とは異なり、触媒粒子を足場に複数の CNF が成長する機構であることを明らかにし、この成長機構が本法において比較的径の小さい PCNF が成長する主たる要因であると結論づけている。

第 4 章では、エッジリッチな CNF の吸着剤としての応用の第一歩として、オゾン処理によって CNF 表面に含酸素官能基を高密度修飾した吸着剤を試作し、アンモニアと水蒸気の吸着特性を詳細に検討している。その結果、本法によって合成された PCNF および CSCNF の単位 BET 表面積あたりの含酸素官能基量は、活性炭素繊維などの既存の炭素系吸着剤に比べて、2 倍以上の高密度にすることが可能であることを実験的に明らかにしている。特にアンモニア吸着に関しては、相対圧が 0.1 以下の圧力域においては、表面含酸素官能基に対する特異的吸着が支配的であり、その結果、吸着容量は官能基密度に比例することを明らかにしている。さらに、吸着熱に関して詳細な検討を加えることで、アンモニアの吸着は、アンモニア分子と表面含酸素官能基間の水素結合に支配されると推察している。そして、エッジリッチな CNF は、機能性官能基による高密度な表面修飾が可能な官能基担体であり、この特長を生かした特異的吸着剤としての応用に極めて有望であると結んでいる。

第 5 章は結論であり、本論文の内容を総括した上で、今後の研究課題の整理と将来展望を行っている。

以上要するに本論文は、エッジリッチな CNF の新規な合成法を確立し、その方法によって合成された CNF の吸着剤としての応用の方向性までを提示したものであり、工学的に高い価値を有し、吸着工学および化学システム工学への貢献は大きい。

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。