

博 士 学 位 論 文 要 旨 の 草 稿

所 属 総合理工学専攻 エネルギー・システム材料分野

学籍番号 21HS207A

氏 名 長田 勇樹

論文題目 高選択的水透過性 SWCNT 膜の開発

要 旨 （注：和文の場合は2,000字程度，英文の場合は1,000語程度にまとめること.）

水は人類の体において最も多く含まれる物質で，生命活動を支えている．安全な飲み水を確保することは人類にとって重要であるが，世界人口の約40%が水不足に悩まされており，水資源問題の解決に向けて供給量を増やすことが課題である．供給量を増やすための水処理技術について，海水の淡水化技術は膨大な資源である海水を利用するために大変魅力的である．しかし，その造水割合は今なおかなり少なく，高い塩分濃度のために脱塩するエネルギーコストが高い．近年では，浄水に関する基礎的な科学と技術に関する研究の重要性が増しており，膜分離技術を利用する研究が盛んである．膜利用した浄水技術として逆浸透膜法が挙げられ，浸透圧の原理を利用する．既存技術においては，逆浸透における操作エネルギーの大きさや，モジュールの大きさによる設置スペース・土地の制約を受ける．このため，より小型で単位重量・単位空間当たりの分離性能を担保しつつ，モジュール設計の柔軟性を考慮する必要がある．また，浸透膜法における最大の問題である再利用性の低さも環境破壊の観点から問題である．これらをふまえ有望な分離材料として挙げられるのが，ナノカーボン材料である．ナノカーボン材料は，一原子厚みの壁構造を有することから，単位重量・単位空間当たりにおける表面積やその吸着能において大きな利点を持つ．なかでもカーボンナノチューブは，比表面積の大きさや電気的特性が優れているため新規膜材料として有望である．しかしそれらナノカーボン材料を用いた膜の多くは他の物質との複合材料によるものであり，ナノカーボン材料単体の基礎的な研究は少ない．そこで本研究では，将来の浄水技術を革新しうる新規ナノカーボン材料を用いて，透過孔を有するナノカーボンのイオンおよび水の透過性を理解することを目的とした．これにより，透過孔の賦与による気体・イオン・水分子の透過性の支配因子を明らかにする端緒を得るとともに，カーボン膜によるイオンの選択的分離膜の設計指針に役立つはずである．

本論文は7章で構成されている。

第1章では、序論として人類における水の重要性を述べ、既存の浄水技術について説明した。また、浄水における望ましい技術と有望な分離材料について述べ、その素材としてナノカーボン挙げ、本研究の目的および本論文の構成を述べた。

第2章では、ナノカーボン材料のグラフェン壁へのナノ窓の形成に焦点を当て、ナノスケールの窓（ナノ窓）について述べた。これにより、ナノカーボン材料の表面積を効率的に利用することができ、分子やイオンの選択性が向上し、分離技術の応用へとつながる。ナノカーボン材料において、結晶性が良く、ナノ窓を創製する基材として安定な構造を持つ単層カーボンナノチューブ（SWCNT）を用いて、単一原子触媒を用いた酸化処理によるナノ窓形成について評価した。単一原子触媒での酸化は、結晶性グラフェン構造を著しく劣化させることなく、狭いナノ窓を生成することができ、ナノ窓の数密度を調整することができた。単原子触媒酸化法は、単結晶グラフェンにナノ窓を形成するのに有望であることが分かった。

第3章では、高温アニーリング処理（2073 K）により、高純度で結晶性のある SWCNT 自立膜を作製することができた。ラマン分光研究の結果から、高温アニーリング処理が SWCNT の自立膜化に伴う結晶性の悪化を回復したことが示された。X 線回折およびラマン分光研究により、高温アニーリング処理によって SWCNT 自立膜の規則的なバンドル構造と高い結晶性が維持されることが明らかとなった。

第4章では、SWCNT 自立膜を用いて、単一原子触媒を用いた酸化処理によるナノ窓形成について評価した。N₂ 吸着等温線の低圧吸着ヒステリシス、TEM 観察から、単一原子触媒が SWCNT 自立膜の結晶性の良いグラフェン壁にナノ窓を生成するのに有効であることを示した。

第5章では、ナノ窓を導入した SWCNT 自立膜を用いて、静電容量測定を行うことで水和イオンの透過性を評価した。その結果、単原子触媒酸化によるナノ窓創製から、選択性の高い SWCNT 吸着材を作製することができた。ナノ窓を介した水和イオンの選択的透過挙動は、ナノ窓を介した部分脱水に関する貴重な情報を与えた。このアプローチは、ナノ窓構造の特性評価に加え、膜を介したイオン透過プロセスを理解するための重要な手法のひとつとなるはずである。

第6章では、ナノ窓を導入した SWCNT 自立膜を用いて、水蒸気吸着測定を行うことで、水分子の透過性を評価した。ナノ窓を介した水分子の透過挙動は、ナノ窓近傍におけるエネルギー障壁と密接に関わりがあることが示唆される情報を与えた。

第7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、ナノカーボン材料（SWCNT）単体の内部空間を利用した気体分子・水和イオン・水分子の吸着・透過挙動に関する基礎的な知見が得られた。今後、更に配向的な SWCNT 自立膜の作製が可能になると、電場印加下での高選択的水透過法についてのより有望な方向性が得られると考えられる。本研究を礎にして、脱イオンを用いた浄水技術に対して、新たな展開を試みる必要がある。