

氏 名	ナッタポーン トナノン Nattaporn Tonanon
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	論 工 博 第 3943 号
学位授与の日付	平 成 19 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	Control of Nanostructure and Morphology of RF Carbon Gel (RF カーボングルのナノ構造とモルフォロジー制御)
論文調査委員	(主 査) 教 授 田 門 肇 教 授 宮 原 稔 教 授 三 浦 孝 一

論 文 内 容 の 要 旨

多孔性カーボングルは、炭酸ナトリウムなどを触媒として、レゾルシノール (R) とホルムアルデヒド (F) からゾルーゲル重合、乾燥、炭素化によって作製される。本論文は、界面活性剤や超音波照射を利用したカーボングルのナノ構造とモルフォロジーの制御に関する研究をまとめたもので、序論と結論を含めて8章からなっている。

第1章は序論であり、研究の背景と目的を述べている。まず、カーボングルの合成に関する既往の研究を紹介し、ナノ構造とモルフォロジーの高度制御を本研究の目的とした経緯を述べている。また、本研究で界面活性剤、超音波照射を利用する着想を既往の研究を交えて説明している。

第2章では、界面活性剤を用いた逆相乳化重合によって合成したレゾルシノール-ホルムアルデヒド (RF) 湿潤ゲル微粒子を凍結乾燥、炭素化することでカーボン微粒子を作製し、細孔構造に及ぼす界面活性剤の影響を詳細に検討している。界面活性剤の種類や濃度を変えることでカーボン微粒子の BET 表面積、メソ細孔容積、細孔分布を制御できることを明らかにしている。

カーボングルの作製には炭酸ナトリウムなどのアルカリ触媒を使用するが、高濃度触媒 (高 pH) 条件下ではメソ細孔性カーボンを作製できない。そこで、第3章では、カーボングルの合成条件を広げるために、RF 水溶液のゾルーゲル重合過程での超音波照射に検討を加えている。超音波照射によって、ゲル化時間が劇的に短縮し、触媒濃度が高い場合でもメソ細孔特性に優れたカーボングルを作製できることを初めて提示している。

第4章では、超音波照射下で逆相乳化重合によってサブミクロンカーボン微粒子を合成し、粒径分布、細孔分布に関して詳細に検討している。逆相乳化重合時に超音波を照射すれば、ホモジナイザーを使用した乳化重合と比較して粒子径の小さなサブミクロン微粒子を作製できることを指摘している。また、超音波照射によってカーボングルの粒子径が小さくなるだけでなくメソ細孔特性も向上することを明らかにしている。以上の知見により、サブミクロンカーボン微粒子の合成に超音波照射が有用であると結論付けている。

第5章では、3次元共連続構造のマクロ孔をもつカーボンクライオゲルモノリス (連続したマクロ流路を持つカーボン成型体) の作製法を提示している。ゾルーゲル重合条件と超音波照射の組み合わせによって、界面活性剤をテンプレートとして使用することなく、マクロ細孔性カーボンモノリスが作製できることを明らかにしている。本カーボンモノリスの圧力損失が微粒子充填カラムと比較して格段に小さいので、HPLC 用カラム充填剤としての利用が期待できる。

第6章では、カーボングル表面に形成される特異なナノウィスカーに関して、形成条件を詳細に検討している。本研究で用いたカーボングル作製方法においては、触媒濃度、エージング時間、炭素化温度を選定することによって、カーボングルの表面にナノウィスカーが形成されることを見出している。本方法は外部炭素源、特殊な触媒を使用することなくカーボンナノウィスカーを作製できる特徴があり、カーボングルに特異なモルフォロジーを付与することができる。

カーボングル作製においては、ゾルーゲル法で作製したナノ構造を保持した状態で乾燥ゲルを得ることが重要である。そのために超臨界乾燥や凍結乾燥が用いられるが、実用的な乾燥法とは言えない。そこで、第7章では、カーボングル作製に

におけるマイクロ波乾燥の利用を検討している。マイクロ波乾燥を利用すれば、超臨界乾燥、凍結乾燥に比べて乾燥時間はさわめて短い、乾燥及び炭素化過程でのナノ構造破壊が問題となり、高濃度触媒（高 pH）条件下ではメソ細孔性カーボンを作製できない欠点がある。しかし、ゾルーゲル重合過程での超音波照射を併用すれば、マイクロ波乾燥を用いてもメソ細孔性あるいはマクロ細孔性カーボンモノリスを作製できることを明らかにしている。

第 8 章は結論であり、本論文で得られた成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

多孔性カーボングエルは、炭酸ナトリウムなどを触媒として、レゾルシノール（R）とホルムアルデヒド（F）からゾルーゲル重合、乾燥、炭素化によって作製される。本論文は、界面活性剤や超音波照射を利用したカーボングエルのナノ構造とモルフォロジーの制御に関する研究をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. 逆相乳化重合によって合成するカーボン微粒子のナノ構造に及ぼす界面活性剤の影響を詳細に検討し、界面活性剤の種類や濃度を変えることで BET 表面積、メソ細孔容積、細孔分布を制御できることを明らかにした。また、逆相乳化重合時の超音波照射によって従来よりも粒径の小さなサブミクロン粒子を作製できることを見出した。
2. ゾルーゲル重合過程でレゾルシノール—ホルムアルデヒド（RF）水溶液に超音波を照射すれば、ゲル化時間が劇的に短縮し、触媒濃度が高い場合でもメソ細孔特性に優れたカーボングエルモノリスを作製できることを初めて提示した。
3. ゾルーゲル重合条件と超音波照射の組み合わせによって、テンプレートを使用することなく、スポンジ状の 3 次元連続構造のマクロ細孔性カーボンモノリス（連続したマクロ流路を持つカーボン成型体）の作製に成功した。本カーボンモノリスは HPLC 用カラム充填剤としての利用が期待できる。
4. 触媒濃度、エージング時間、炭素化温度を選定することによって、カーボングエルの表面にナノウィスカーが形成されることを見出した。本方法は外部炭素源、特殊な触媒を使用することなくカーボンナノウィスカーを作製できる特徴があり、カーボングエルに特異なモルフォロジーを付与することができる。
5. 超臨界乾燥や凍結乾燥がカーボングエルの作製にこれまで用いられてきたが、ゾルーゲル重合過程で超音波を照射すれば、マイクロ波乾燥を用いても多孔性カーボングエルが作製できることを明らかにした。

以上、本論文は、ゾルーゲル法で合成した有機ゲルを炭素化して得られるカーボングエルのナノ構造とモルフォロジーの制御に関する新規な知見を与えたものであり、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 19 年 1 月 24 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。