



|              |   |
|--------------|---|
| Title        | Studies on the Development of Advanced Analytical Techniques for Coal Tar-Derived Mesocarbon Microbeads and Isotropic Pitches                   |
| Author(s)    | 張, 岩  |
| Citation     | 大阪大学, 1999, 博士論文  |
| Version Type |   |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/42090">https://hdl.handle.net/11094/42090</a>   |
| rights       |   |
| Note         | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

|              |  |
|--------------|--|
| 氏 名          | 張 岩  |
| 博士の専攻分野の名称   | 博士 (工 学)   |
| 学 位 記 番 号    | 第 14988 号  |
| 学位 授 与 年 月 日 | 平成 11 年 11 月 25 日  |
| 学位 授 与 の 要 件 | 学位規則第 4 条第 1 項該当<br>工学研究科 分子化学専攻   |
| 学 位 論 文 名    | Studies on the Development of Advanced Analytical Techniques<br>for Coal Tar-Derived Mesocarbon Microbeads and Isotropic<br>Pitches<br>(コールタール系メソカーボンマイクロビーズおよび等方性ピッチ<br>の高度分析手法の開発研究) |
| 論 文 審 査 委 員  | (主査)<br>教 授 野村 正勝<br>(副査)<br>教 授 馬場 章夫 教 授 神戸 宣明 教 授 村井 真二<br>教 授 井上 佳久 教 授 黒沢 英夫 教 授 松林 玄悦<br>教 授 真嶋 哲朗 教 授 坂田 祥光 教 授 田中 稔  |

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は炭素材料の前駆体ピッチの精密な構造分析手法を確立することを目的とし、検討を行った結果について以下に要約する内容を記したものである。

第一章では、異なるコールタールピッチから調製された二種類のメソカーボンマイクロビーズ(MCMB)を対象に、ブチル化による可溶化、GPC 法を用いたテトラヒドロフラン可溶分の分子量測定、固体  $^{13}\text{C}$ -NMR 測定、元素分析などを行うことにより詳細な構造情報を得、MCMB の平均化学構造モデルを提案している。

第二章では、第一章で用いた二種類の MCMB およびそれらのブチル化物を対象に、IR 分光法、走査型電子顕微鏡(SEM)およびラマン分光法を用いて分析を行っている。IR 分光法と SEM 観察により、両 MCMB の構造上の違いを明らかにし、また、SEM 観察とラマン分光法により、テトラヒドロフランあるいはキノリン溶媒を用いた超音波洗浄前後の MCMB の構造変化についても調べている。

第三章では、汎用炭素繊維の原料となる等方性コールタールピッチを研究対象としている。まず、二種の原料ピッチと三種の紡糸ピッチをベンゼンあるいは二硫化炭素で抽出し、得られた溶媒可溶分の FT-IR 測定を行っている。これにより、得られた水素芳香族性指数を  $^1\text{H}$ -NMR の結果と比較し、測定方法および解析精度の検証を行っている。さらに、 $^1\text{H}$ -NMR、IR、X線回折および FD-MS 等の手法を組み合わせることにより、ピッチ全体および溶媒可溶分に対する詳細な構造解析を行い、ピッチ間の微妙な構造の差異を明らかにしている。

第四章では、第三章で用いた三種の紡糸ピッチを対象に、熱天秤を用いた空気中での熱処理および IR 測定を行い、ピッチの不融化反応性を評価している。この結果と第三章で得られたピッチの構造情報に基づき、化学構造と不融化反応性との関連について検討している。

## 論文審査の結果の要旨

第一章では、二種類のメソカーボンマイクロビーズ (MCMB) を対象に、ブチル化による可溶化を検討している。その結果、MCMB 構成成分の86-95%をテトラヒドロフラン可溶分に転化することに成功している。さらに、GPC 法を用いたテトラヒドロフラン可溶分の分子量測定、固体  $^{13}\text{C}$ -NMR 測定、元素分析などを行うことにより、MCMB の分子量分布、分子サイズおよび形状について重要な知見を得ている。

第二章では、IR 分光法、走査型電子顕微鏡 (SEM) およびラマン分光法などを有効に組み合わせることにより、両 MCMB の組成および構造上の違いを明らかにし、また、MCMB の表面層と内部炭素の微細構造が異なるという新たな知見を得ている。これらの結果をもとに、リチウム二次電池の負極材料としての MCMB の性能を向上するためには、表面構造の修飾が重要であることを指摘している。

第三章では、 $^1\text{H}$ -NMR、IR、X 線回折および FD-MS 等の手法を用いて、汎用炭素繊維の原料となる等方性コールタールピッチおよびそれらの溶媒可溶分に対する詳細な構造解析を行っている。その中で、FT-IR を用いたピッチ類の簡便かつ精密な水素芳香族性指数の測定方法を確立している。

第四章では、FT-IR を用いたピッチの不融化反応性を評価する新たな手法を創案している。この方法により得られた情報は、前駆体ピッチの脂肪族水素含量のわずかな差がピッチ全体の不融化反応性に顕著な影響を与えることを示唆している。

以上のように、本論文は炭素材料の前駆体ピッチに対するいくつかの新しい構造分析手法を開発することに成功しており、炭素材料の分野で貢献するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値のあるものと認める。