

氏名 島山 一翔

主論文審査の要旨

酸化グラフェン(GO)は、その表面に親水性である様々な酸素含有官能基と疎水性である π 電子共役系が共存する多機能材料である。そのため、実用的な応用範囲も非常に広く、近年、世界で最も精力的に研究されている材料の1つである。GOは原料として安価な天然グラファイトを簡単な手法で酸化することにより大量に製造でき、さらに炭素と酸素というありふれた原子のみで構成されていることから、資源に乏しい日本にとって将来、重要な材料となり得る可能性を秘めている。本論文では、GOの基礎的な光反応とプロトン伝導について研究した結果を全7章にまとめている。

第1章では、序論として、酸化グラフェンの物理的、化学的性質および種々の合成方法を解説するとともに、本論文の背景、目的ならびに意義などについて記述している。

第2章では、GOの新たな還元手法として、容易で簡便な光還元法の開発とその機構解明について記述している。GOは絶縁体であるため、電子デバイスや電気伝導材料として使用するためには、高い電気伝導性を有する還元体(rGO)に変化させる必要がある。そのため、マイルドな条件下でGOを還元する手法の開発は、GOの広範な応用にとって非常に重要である。本研究では、世界に先がけてGOに紫外光を照射するという非常に容易で安全な手法でGOを還元することに成功している。さらに、マイクロスケールのフォトパターニングにも成功し、GOのマイクロ電子デバイスへの応用の可能性も記述している。

第3章では、水中でのGOの光反応について報告している。グラフェンはバンドギャップゼロの半導体であるのに対して、GOは sp^2 ドメインの大きさに依存したバンドギャップをもつことが知られている。このため、GOは半導体の性質を示し、光触媒材料として働く可能性が考えられる。本研究では、GOの光触媒材料としての可能性を評価するために水中で光を照射し、生成物の分析を行っている。その結果、光照射によりGOは水と反応し、水素と二酸化炭素を発生しながら還元されていることが明らかとなった。また光照射による反応メカニズムについても記述している。

第4章では、光照射によるGOのナノポア生成について報告している。ナノポア生成によりGOのエッジ量が増加し、エッジ特有の触媒活性や磁性が観察される可能性もある。ここでは、酸素中で紫外光を照射するという簡単な手法により、ナノポアを作製することに成功しており、光照射時間を制御することによりナノポアの量を制御できることも述べられている。また、各種の分析により、ナノポアはGOの酸素官能基である sp^3 部位が選択的に二酸化炭素に分解されることで生成することを明らかにしている。

第5章では、GOのプロトン伝導について報告している。GOは親水基である様々な酸素官能基を多数有しており、それを介してプロトン伝導が生じる可能性がある。そこで、本研究では、世界に先がけ詳細なGOのプロトン伝導度測定を行っている。その結果、GOは比較的高いプロトン伝導を有し、面内方向のプロトン伝導は面垂直方向のプロトン伝導に

比して 1 桁ほど高いことを明らかにしている。さらに、プロトンが GO のエポキシ基を伝って層間を Grotthuss 機構により伝導していることを明らかにしている。また、層間に硫酸を添加することで、代表的なプロトン伝導体であるナフィオンと同等またはそれ以上の高いプロトン伝導度を有する材料の創成に成功している。

第 6 章では、還元による GO の電子およびプロトン伝導度の制御について報告している。GO を還元すると電子伝導度が増加することはよく知られている。一方、プロトン伝導度は、エポキシ基量と相関性があるために、還元によるエポキシ基の減少で減少するはずである。ここでは、光および熱還元の光照射時間と還元温度をそれぞれ制御することで、GO 表面の酸化度、特にエポキシ基の量を変化させ、電子およびプロトン伝導度を制御することに成功している。また、同程度の電子およびプロトン伝導度を持つ混合伝導体としての GO の創成に成功している。

第 7 章では、本研究で得られた成果を要約している。

本研究の内容は、独創性や新規性において大変優れており、国内外の学会でも認められるところとなっている。この研究に関して、学術論文 7 編(うち筆頭著書が 3 編)が公表されており、国際会議 8 回、国内会議 17 回の講演が行われており、学位授与基準を十分に満たしている。また学位論文提出者は、上記以外の研究に関しても、学術論文 18 編を公表しており、化学的専門の知識、総合的理解力や研究能力も高い。以上の結果から、本審査委員会は本論文が博士(工学)の学位を授与すべき十分な内容を有するものと判断した。

最終試験の結果の要旨

審査委員会は、学位論文提出者に対して当該論文の内容及び関連分野全般について諮問を行った。その結果、論文提出者は、当該研究内容分野及び周辺領域について十分な知識と理解力を有していると判断した。また、学位論文提出者は既に英文による論文 25 編(うち筆頭著書が 3 編)を公表し、国際学会・会議等で 7 件の英語発表を行っており、語学力に関しても十分な能力を有すると判断される。以上の理由から、学位論文提出者は研究者として十分な研究遂行能力を持ち、外国語(英語)による論文作成能力についても学位授与に付随して要求されるレベルにあると認めた。以上の結果に基づき、最終試験は合格と判断した。また、当該論文の内容は既に学術論文および国内外の学会で公表済みであるため、学位論文のインターネット公表を「全文」とした。

審査委員	産業創造工学専攻物質生命化学講座	教授	松本	泰道
審査委員	産業創造工学専攻物質生命化学講座	教授	町田	正人
審査委員	産業創造工学専攻物質生命化学講座	講師	鯉沼	陸央
審査委員	理学専攻化学講座	教授	速水	真也