

氏 名 立石 光

#### 主論文審査の要旨

上記の学位論文提出者は、酸化グラフェンの電気化学特性とそれを用いた電池への応用に関する研究を行い、以下に記述したように多くの世界に先駆ける研究成果を挙げた。その成果をまとめたものが学位論文となっている。

学位論文の第 1 章では、酸化グラフェンの作製および還元方法と、酸化グラフェンが有する化学的性質およびその応用に関する研究の背景を記述している。

第 2 章では、純水中で炭素電極に高電圧を印加する新たな酸化方法による酸化グラフェンの作製に成功したことについて記述している。ここでは、印加電圧および印加時間を制御することで酸化グラフェンの酸素含有量が制御可能であることを見出し、酸化剤を必要とせず純水中で酸化可能であることから、不純物を一切含まない酸化グラフェンを作製できることを明らかにしている。また、作製した酸化グラフェンおよび電気化学還元された酸化グラフェンの電気化学特性を評価し、電気化学還元された酸化グラフェンは電気化学キャパシタ特性と光電流特性および酸素還元反応触媒活性を有することを明らかにしている。さらに、これらの特性が酸化グラフェン内の欠陥に基づいていることを見出した点は、酸化グラフェンの機能発現解明にとって意義深い。

第 3 章では、電解酸化／還元サイクルプロセスにより、高い電気化学キャパシタ容量をもつ電極の作製に成功したことについて記述している。電解還元法により作製された電極は、他の還元法により作製された電極に比して、多くの欠陥を有していることが XPS 測定の結果より明らかになり、このことが高い電気化学キャパシタ容量を発現させることを明らかにしている。さらに、本手法において、電解酸化／還元サイクルを行うことにより、酸化グラフェンの再酸化および再還元の反応メカニズムを解明したことは意義深い。

第 4 章では、酸化グラフェンを担体とした、高い酸素還元反応触媒活性を有する鉄フタロシアニン／還元された酸化グラフェン電極触媒の開発に成功したことについて記述している。本ハイブリッド触媒の作製方法は、酸化グラフェンと鉄フタロシアニンのそれぞれがもつ負と正の電荷による静電的相互作用と $\pi$ 電子相互作用の 2 つの相互作用により自己組織化でき、そのため高分散状態で担持できるということを明らかにしている。また本ハイブリッド触媒は、多数報告されている酸化グラフェンを用いた電極触媒よりも優れた触媒活性を有する点は注目に値する。

第 5 章と 6 章では、酸化グラフェンの有するプロトン伝導性に着目し、電池の電解質として用いることにより、新たな概念の燃料電池および鉛蓄電池の開発に成功したことについて記述している。燃料電池においては、酸化グラフェン膜を電解質とした燃料電池が、室温加湿なしの条件下において、従来型の Nafion 膜を電解質とした固体高分子形燃料電池と同等以上の特性を示すことを見出している。すなわち、酸化グラフェンは、Nafion 膜に比べ、安価かつ、大量に作製可能であるため、燃料電池実用研究において非常に意義深い。

また、鉛蓄電池においては、従来型の鉛蓄電池で使用されている硫酸水溶液の代わりに、酸化グラフェン膜を固体電解質として用いることにより、小型で軽量かつ、液漏れの心配のない鉛蓄電池が開発できることを示している。

第7章では、結論として本論文で得られた成果を要約している。

以上の研究においては、酸化グラフェンの電気化学特性について深く追求し、実際に種々の電気化学デバイスを開発しており、新規性や工学的有用性の高い内容となっている。本論文の主要部分は学術専門誌6編（うち筆頭著書が3編）に公表されており、その成果は国内外の学会で認められるところとなっており、講座の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、学術論文12編が公表済みであり、化学的専門知識、総合的理解力や研究能力も高く、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、学位論文提出者は、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語による論文18編（うち筆頭著書が3編）を公表し、学会等で18件（うち国際学会が9件）の講演を行っており、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もち、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、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及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