

氏 名	武内 裕城		
授与した学位	博 士		
専攻分野の名称	理 学		
学位授与番号	博甲第	7 2 6 7	号
学位授与の日付	2 0 2 5 年	3 月	2 5 日
学位授与の要件	自然科学研究科 地球生命物質科学専攻 (学位規則第 4 条第 1 項該当)		
学位論文の題目	Structural Design of Nanoporous Materials with Substance Formation on Two-Dimensional Materials Using Calcination (焼成による二次元物質上での物質形成を用いたナノポーラス材料の構造設計)		
論文審査委員	教授 大久保 貴広	教授 山方 啓	准教授 武安 伸幸
学位論文内容の要旨			
ナノポーラス材料は、ナノ空間の存在や高比表面積といった特徴を有し、吸着材、触媒や電極材料等の様々な用途に用いられている。物質の分離・変換プロセスやバッテリーの高性能化等により、地球温暖化といった環境問題やエネルギーの課題を解決するため、幅広い応用用途を支えるナノポーラス材料の合成技術の発展が求められている。本研究では、厚さがナノスケールの二次元骨格を有するナノシートに代表される二次元物質上での物質形成を焼成により誘起することで、高機能な構造を有するナノポーラス材料の設計をおこなった。炭素系、酸化物系、ポリマー系の 3 種類の二次元物質を用いて、材料合成をおこない、二次元物質上で誘起される現象およびそれらの形成過程について検討した。 第一章では、ナノポーラス材料とその評価手法、層状化合物やナノシート (積層体)、そして鋳型法を用いた材料の合成法についての説明および本研究の目的について述べた。 第二章では、炭素系の酸化グラフェン (GO) を鋳型に用いてシリカナノシートの形成をおこなった研究について述べた。GO 表面上にシリカのモノマーを修飾し、その後、焼成することで、GO 表面上でのシリカの形成および鋳型となる GO の除去を同時に誘起し、多孔性シリカナノシートを合成した。合成したシリカナノシートは、厚さ約 1 nm の極薄の厚みや約 900 m²/g の高比表面積といった特徴を有していた。 第三章では、ポリマー鋳型を用いて、酸化物系のクレイ上での金属酸化物 (CuO_x) の形成をおこなった研究について述べた。Cu²⁺-ポリエチレンジアミン (PEI) 錯体をクレイに導入後、焼成により CuO_x の形成および PEI の除去を誘起し、CuO_x/クレイ複合体を開発した。前駆体である Cu²⁺-PEI 錯体 (PEI) 中の Cu²⁺ と PEI の比を変更することで、クレイへの錯体 (PEI) や CuO_x の導用量、CuO_x の粒子サイズの変化が確認された。 第四章では、ポリマー系のカーボンナイトライドを構造指向剤に用いて、CuO と SiO₂ の形成を同時に誘起する研究について述べた。尿素の加熱重合により得たカーボンナイトライド、CuO 源と SiO₂ 源の混合物を焼成することで、CuO と SiO₂ の形成および Cu 種によるカーボンナイトライドの除去が誘起され、高い比表面積や特徴的な構造を有するナノポーラス CuO-SiO₂ 複合体が合成された。 以上のことから、本論文では、焼成による二次元物質上での物質形成を活用し、ナノポーラス材料の構造を設計した研究内容をまとめた。加えて、炭素系、酸化物系、そしてポリマー系の二次元物質を用いて材料合成をおこない、それぞれの二次元物質の特性を活かした材料合成手法の指針を記した。具体的には、GO といった大気雰囲気下の焼成により除去できる二次元物質を鋳型に用いることで焼成時に目的物質の形成と鋳型の除去を同時に誘起し、目的組成のナノポーラス材料を合成できることを示した。また、クレイといった耐熱性を有する二次元物質を焼成時における物質形成のための支持材として用いることで、物質修飾されたナノシートが合成されることを示した。本研究や材料の合成手法に関する研究が発展することで、高機能な構造や性質を有する材料の開発やその応用用途の発展に貢献することが期待される。			

論文審査結果の要旨

本学位論文は、ナノオーダーの厚さを有する二次元物質である酸化グラフェン (GO)、粘土鉱物、および窒化炭素を用い、それらの表面上に異種材料を焼成により構造化することで、高機能なナノポーラス材料を創製した一連の研究成果をまとめたものである。

まず、GO を鋳型に用いてシリカナノシートを創製する研究に取り組み、多孔性のナノシートを得ることに成功した。合成したシリカナノシートは、厚さ約 1 nm の極薄の厚みで高比表面積 (約 900 m²/g) なものであった。GO は次世代の炭素材料として大きな期待が寄せられている材料であり、この材料を出発物質として新たな機能性シリカ材料を創製できた点はインパクトが高い。また、粘土鉱物表面上に担持する酸化銅ナノ粒子の構造を、ポリマーを鋳型として制御する試みも行った。銅イオンを含むポリエチレンイミン (PEI) 錯体 (Cu-PEI) を粘土鉱物に導入後、酸化銅の形成と PEI の除去を焼成により同時に行い、酸化銅/粘土鉱物複合体を創製した。前駆体である Cu-PEI 中の銅イオンと PEI の比により、粒子サイズを制御できること示した。この材料は、酸化銅ナノ粒子の粒子サイズに依存する二酸化炭素吸着能を有していることも明らかとなった。更に、ポリマー系材料である窒化炭素を構造指向剤としている用い、酸化銅とシリカの創製を一段階の焼成処理により行うための材料開発にも取り組んだ。尿素の加熱重合により得た窒化炭素に銅とシリカの前駆体を混合して焼成することで、高い比表面積を有する低嵩密度のナノポーラス複合体を得ることができ、高比表面積に由来して二酸化炭素に対する高い吸着能を有していることもわかった。

以上のように、本論文では二次元物質を出発原料とした、各種ナノポーラス材料の創製指針を明瞭に示すと共に、個々の材料が有するガス吸着特性や光吸収特性など、応用利用の観点からも重要な物性をまとめることができた。学位論文でまとめられた成果は、学生が研究計画から論文作成までの全てに主体的に取り組んだ結果得られたものであり、博士 (理学) の学位授与にふさわしいものと判断できる。