

氏名	李 昭 (LI Zhao)		
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 5	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	Synthesis and characterization of novel nanoporous carbons using graphene oxide (酸化グラフェンを用いた新規ナノ多孔性炭素の合成と特性評価)		
論文審査委員	教授 大久保 貴広	教授 山方 啓	教授 上田 貴洋
学位論文内容の要旨			
Carbon materials are essential in energy storage, catalysis, adsorption, sensor fabrication, and environmental remediation. Among them, graphene oxide (GO) has attracted much attention due to its oxygen functional groups, including carboxyl, hydroxyl, carbonyl, and epoxy groups. However, GO tends to aggregate due to π-π interactions and hydrogen bonding, resulting in a specific surface area (SSA) far below its theoretical value. This study addresses these limitations by synthesizing novel nanoporous carbon materials with enhanced SSA and porosity through three approaches. First, mesoporous carbon materials were synthesized by high-temperature thermal exfoliation of GO activated with alkali metal nitrate (MNO_3). The process increased the mesopore content, and the mesopore to micropore volume ratio of rGO-KNO_3 reached 22.4, the SSA reached $359\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$, and the pore volume reached 1.26 mL g^{-1}. The order of exfoliation efficiency was: rGO-KNO_3 > rGO-$NaNO_3$ > rGO-$LiNO_3$. Secondly, zinc phthalocyanine (ZnPC) was deposited on rGO to form nanowindows during calcination in air at $450\text{ }^\circ\text{C}$. ZnPC undergoes thermal decomposition to generate ZnO during calcination in air at $450\text{ }^\circ\text{C}$. The catalytic effect of ZnO promotes the oxidation process of carbon atoms on the rGO surface, leaving a large number of nanowindows on the rGO surface. The resulting rGO-ZnPC-Air-$450\text{ }^\circ\text{C}$ has an SSA of $482\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$ and a pore volume of 0.92 mL g^{-1}, and its CO_2 adsorption capacity is improved due to its abundant nanowindow structure and enhanced van der Waals interactions. Finally, metal ions functioned as bridges to promote the insertion of carbon oxide nanohorns (CNHox) between GO nanosheets, reducing aggregation and increasing porosity. Among the composites, GO-CNHOx-Ca showed excellent performance with an SSA of $374\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$ and a pore volume of 0.36 mL g^{-1}. This insertion method alleviated GO aggregation, facilitated nanowindow exposure, and improved the mesoporous structure. The synthesized composite had a huge improvement in the adsorption capacity of CO_2 from air. These findings provide a new strategy for developing GO-based materials with high SSA and porosity, thereby promoting their applications in adsorption and environmental fields.			

論文審査結果の要旨

本学位論文は、次世代の最先端を担う炭素材料として大きく期待されている酸化グラフェン（GO）を基材として、全く新しい概念に基づきナノサイズの細孔を多量に有する材料を創製すると共に、それらの有する吸着特性が既存の材料よりも優れていることをまとめたものである。

これまでも GO の比表面積向上を指向した様々な研究が行われているが、高分子等の異種材料との複合化により解決している報告例が多く、炭素材料が有する熱安定性が失われるなどの問題も多かった。本研究ではまず、GO をアルカリ金属硝酸塩水溶液中で混合することで、金属イオンを介した GO シート間の新たな結合を付与することで多孔性含有量が大幅に増加した GO の創製に成功した。骨格構造は GO であるため、多量の酸素含有表面官能基も維持され、水中からの銅イオン吸着量は一般的な炭素材料の数倍程度になるなど、興味深い性質を示す結果を得た。また、亜鉛フタロシアニンとの複合化とその熱分解により生じる酸化物等の触媒作用が還元型 GO にナノメートルスケールの穴（ナノウィンドウ）を生じることで、比表面積のみならず、二酸化炭素ガスの吸着能力の向上に資することも明らかにした。更に、GO と複合化させる材料として炭素材料の一つである酸化カーボンナノホーン（CNH）を GO ナノシート間に挿入したナノ構造材料の開発を行い、CNH がナノシート表面のナノウィンドウを効果的に露出するだけでなく、新たな細孔構造の形成にも役立ち、複合材料の機能性の向上をもたらすことを見出した。

以上のように、本研究ではアルカリ金属イオン、亜鉛フタロシアニン、および CNH と GO との反応や複合化を系統的に検討することにより、GO の凝集を低減すると共に GO への多孔構造の効果的な導入に成功した。これは GO を基材とする材料開発における新しい設計指針につながる基本的成果であり、研究の分量とオリジナリティーの観点共に博士（理学）の学位に値すると判断できる。