

氏 名	ISRAEL ORTIZ ANAYA		
授与した学位	博 士		
専攻分野の名称	工 学		
学位授与番号	博甲第	7 2 8 6	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 応用化学専攻 (学位規則第4条第1項該当)		
学位論文の題目	Tuning the 3D Structure of Graphene Oxide Assembly for Precisely Controlled Adsorption Properties (酸化グラフェンの3次元組織化による吸着特性の精密制御)		
論文審査委員	教授 仁科 勇太	教授 坂倉 彰	教授 菅 誠治
学位論文内容の要旨			
<p>CHAPTER 1: Chapter 1 contains an in-depth literature review of the carbon materials used in this research, which includes activated carbon (AC), graphene oxide (GO), and reduced graphene oxide (rGO). This is followed by an examination of GO covalent functionalization methods and their impact on the surface chemistry and physical structure of the carbon framework. The chapter concludes with an overview of the general concepts of adsorption as an application and a characterization technique, and a brief description of the problems boarded.</p> <p>CHAPTER 2: This study evaluated the methylene blue adsorption method as an alternative to N₂ physisorption for determining the specific surface area of GO. Our comparative analysis with a reference commercial AC revealed that N₂ physisorption cannot adequately estimate the specific surface area of GO. By optimizing the temperature and pH for MB adsorption onto GO, we were able to significant surface area of 1555 m²/g was achieved for GO. Structural characterization through SEM-EDX, XRD, and AFM confirmed uniform MB coverage on GO. The results showed that MB molecules absorbed in a stable, intercalated double-layered arrangement between GO layers, facilitated by π-π and ionic interactions. This study demonstrated that MB adsorption is a viable method for assessing GO surface area.</p> <p>CHAPTER 3: For this study, we synthesized high-surface area rGOs using AA as a reducing agent. Structural characterization, including specific surface area, pore structure, crystallinity, and carbon chemical state, revealed that temperature and reaction time were key factors in controlling the stacking degree of the reduced product. Through a time course analysis, side products of AA were identified by LC-MS, which helped verify the reduction mechanism. Based on the findings, optimal conditions were proposed for creating a high-surface area graphene-based adsorbent. This derivative was then tested in aqueous solutions containing organic and inorganic pollutants, such as methylene blue, methyl orange, and cadmium, demonstrating strong adsorptive capabilities.</p> <p>CHAPTER 4: This study investigated the functionalization of GO with hexylamine, octylamine, and dodecylamine, examining how these alkylamines influence the interplanar spacing in GO. Results showed that interlayer distance was governed by alkylamine length and surface coverage, with near-complete coverage necessary to avoid partial stacking. Thermal treatment further stabilized the functionalized GO, with alkylamines retaining thermal stability up to 150 °C and partial deoxygenation enabling interlayer rearrangement.</p> <p>CHAPTER 5: This chapter presents the general conclusions of this research, along with a summary of each chapter, a list of publications, conferences attended, and acknowledgments.</p>			

論文審査結果の要旨

本学位論文は、酸化グラフェン（GO）の構造制御や化学修飾を基盤として以下の3つの研究を行った。

（１）GOの比表面積評価におけるメチレンブルー（MB）吸着法の有効性を、 N_2 物理吸着法と比較する形で検討した。活性炭を参照物質として比較した結果、 N_2 物理吸着法ではGOの比表面積を適切に評価できないことが明らかとなった。一方、MBの吸着温度およびpH条件を最適化することで、GOの比表面積として1555 m^2/g という高い値を示すことを確認した。さらに、SEM-EDX、XRD、AFMによる構造解析により、GO表面へのMBの均一な吸着が確認された。また、MB分子はGO層間に二重層構造を形成し、 π - π 相互作用およびイオン相互作用によって安定に保持されることが示された。これらの結果から、MB吸着法がGOの比表面積評価に有効な手法であることが示された。

（２）還元剤としてアスコルビン酸を用いた高比表面積の還元型グラフェン酸化物（rGO）の合成を行った。比表面積、細孔構造、結晶性、炭素の化学状態を含む構造解析を実施した結果、還元条件として温度および反応時間がrGOの積層度を制御する重要な因子であることが明らかとなった。また、時間経過に伴う副生成物をLC-MSで解析することで、アスコルビン酸による還元メカニズムの検証を行った。さらに、得られた知見をもとに、高比表面積を有するグラフェン系吸着材の最適合成条件を提案した。この吸着材の性能評価として、メチレンブルー、メチルオレンジ、カドミウムを含む有機・無機汚染物質を水溶液中で吸着試験を行ったところ、高い吸着能が確認された。

（３）GOをヘキシルアミン、オクチルアミン、ドデシルアミンで官能基化し、これらのアルキルアミンがGOの層間距離に与える影響を検討した。その結果、層間距離はアルキルアミンの鎖長と表面被覆率に依存し、完全な被覆が達成されることで部分的な再積層を防ぐことができることが明らかとなった。また、熱処理を施すことで官能基化GOの安定性が向上し、アルキルアミンは150° Cまでの加熱に対して熱的安定性を保持することが確認された。さらに、部分的な脱酸素化が進行することで、GOの層間構造が再編成されることが示された。

これらの研究成果は博士（工学）の学位取得に相応しく、公聴会における発表内容および質疑応答において、研究を遂行する能力が確認できた。以上より、最終試験の結果を合格と判定した。