

## 別紙 1 (博士論文の審査結果の要旨)

専攻名 システム創成科学専攻

氏名 大竹 亜紗美

グラファイトを構成する物質であるグラフェンは、計算科学的な研究から注目を集めていたが実験的な研究は進んでいなかった。しかしながら、2004年の単層剥離の報告以来急激な研究の発展を迎えている。その中でグラファイトを化学的に酸化した酸化グラフェン(GO)は、グラフェンの前駆体として注目され、低コストで大量にグラフェンを供給する唯一の手法として盛んに研究が行われてきた。しかしながら強い酸化によって導入された酸素官能基の多さから、還元によって初期状態であるグラフェンに戻すことが困難であることが明らかになりつつある。そこで現在では、還元することから発想を転換し、導入された酸素官能基への化学反応性を利用して、GOに対して機能性官能基を付加し、様々な機能性を付与することが盛んに検討されている。また、GOは水といった溶媒への分散性を有する。この分散性は前述した機能性官能基の付与によって、様々な有機溶媒に分散するよう改良が施されつつある。しかしながら、その分散性の評価は、全ての報告で目視を用いており、定性的かつ主観的な評価に留まっており、客観的で定量的な評価手法が必要とされており、今後も更なる研究展開が求められている分野である。

本論文は全4章で構成されている。

第1章では、電子機器の普及に関する社会的な背景を踏まえて、シリコン半導体の限界とシリコンに代わる材料として期待されるグラフェンの物性から研究目的について述べた。

第2章では、「機能性GOの合成」について述べた。機能性GOの合成は、新たな機能として撥水性に注目したフッ素化アルキルの付加と、R-トリメトキシシランを使用した簡便なアルキル鎖付加の2つ

について行った。フッ素化アルキルの付加において、接触角測定より、GOと比較して機能性GOの撥水性が良いこと、I-V特性評価より、微弱ながら電気を流すことが可能となったことから、撥水性導電GO薄膜を作製することができた。これにより、撥水性の低下の原因となる帯電状態を解消することが期待される。次に、簡便なアルキル鎖付加において、R-トリメトキシシランの反応性が低いことから、合成溶媒の検討を行ったところ、促進させる反応段階と試薬の鎖長に合わせた溶媒の鎖長を考慮した溶媒検討が必要であるものの、大気下で合成可能な簡便なアルキル鎖付加方法を提示した。これにより、GOに付加可能な官能基の幅を広げることができ、機能性GOのデバイス応用へ広がることが期待される。

第3章では、「分散性の定量的評価」について述べた。定量的な評価のために、濁度計の原理を基に光透過性を利用した分散性評価装置を作製した。始めに光源として高輝度LEDを用いて装置を作製し、GOの水分散性と機能性GOのTHF分散性を評価した。結果として、時間対濃度の分散曲線を得ることができ、定量的な評価が可能となった。また、GOの水分散性の分散曲線をstretched exponential関数でFittingしたところ、この関数に含まれる $\tau$ の値から、分散時間の指標を提示することが可能となった。

一方で、LED光源では試料全体の経時変化を捉えることができて、局所的な変化がわからないといった課題があった。そこで、局所的なレーザー光源を改良・作製しGOの分散曲線について分析を行った。また、GOの分散曲線の分析にあたり、GOのサイズにのみ注目し、遠心分離によるサイズ分離とサイズ毎の分散性評価、サイズ毎の重量割合から再ブレンドしたブレンドGO(GOB)の分散性を評価した。結果として、LED光源による分散曲線とは異なり、濃度が段階的に低下する分散曲線が得られた。また、サイズ毎およびGOBの分散曲線から、同サイズおよび異なるサイズのそれぞれの相互作用が沈

殿に影響していることが確認された。これにより、分散性の定量的な評価が可能となり、分散性の客観的な議論への一石を投じることができた。

第4章では、論文全体の総括を述べている。

以上、本論文は酸化グラフェンを基盤として、「機能性 GO の合成」と「分散性の定量的な評価」を目的として、新しい機能を持つ GO の合成と、簡便なアルキル鎖付加方法の開発を行い、また、GO 及び GO 誘導体の分散性評価の問題に踏み込み、新たに分散性を定量的に評価する手法と装置を提案し、実際に評価を行うことで新たな知見と今後の分散状態を理解する可能性を切り開く有用な結果が示されている。

平成30年2月8日に実施した博士論文公聴会において種々の質問がなされ、いずれも著者の説明により質問者の理解が得られた。

また、本研究は、審査付学術論文1編、学会発表22件等で報告されており、本研究は博士の学位に値すると言える。

以上の審査結果に基づき、本論文は博士（工学）の学位を授与するに値すると判断され、審査員全員一致で合格と判定した。