

学位論文の審査結果の要旨

本論文では、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体への水分子の吸着特性について評価し、その吸着特性からデトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の細孔構造と特異的な吸湿性との相関性を明らかとした。また、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の細孔内からの水の除去および水の吸着により電気伝導性を制御できることを明らかとした。

第1章では、デトネーションナノダイヤモンドおよびその応用事例、ナノダイヤモンドの吸湿性やヌレ性などの界面物性、ナノダイヤモンドの吸湿性に関する過去の研究事例について概説し、本研究の目的を提示した。

第2章では、気体の多孔質材料（細孔内）への吸着に関する一般的な概念、評価方法について概説した。

第3章では、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の物性と吸湿性について評価し、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の吸湿性の発現機構モデルを提唱した。

第4章では、加熱処理によりデトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体に吸着している水を除去すると水分子の吸着能（吸湿性）が向上することを明らかとした。デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体中のウルトラミクロ孔内に水分子が強く吸着しているため、細孔内に水分子は吸着することができない。そのため、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体のウルトラミクロ孔内に吸着している水分子を除去することにより、水分子の吸着サイトが増加して水分子の吸着を促進することを明らかとした。

第5章では、より長時間加熱処理を行うことによりデトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体中のより小さな細孔の割合が増えることを明らかとした。加熱処理後のデトネーションナノダイヤモンドを所定の湿度条件下で静置すると、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体は再び吸湿する。湿度が高くなると、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体中のメソ孔が水分子の吸着に重要になることを明らかとした。

第6章では、デトネーションナノダイヤモンドペレットを作製して、ペレット表面の水のヌレ性や吸湿性について他の多孔質材料ペレットと比較した。デトネーションナノダイヤモンド粒子は疎水性であるにもかかわらず、デトネーションナノダイヤモンドペレットはシリカゲルやゼオライトのような親水性の多孔質材料ペレットよりも高い水吸湿性を示すことが明らかとなった。

第7章では、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体中の水分子と電気伝導性の関係について議論した。加熱処理を行いデトネーションナノダイ

ダイヤモンド粒子凝集体から水を除去すると、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の電気伝導性は低下した。一方で、加湿条件下ではデトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の電気伝導性が向上した。このことから、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体中のマイクロ孔、メソ孔中に吸着している水分子が電気伝導性に起因していることが明らかとなった。

第8章では、デトネーションナノダイヤモンド粒子との比較として、単層カーボンナノホーンへの水の吸着について議論した。

第9章では、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の吸湿性の発現機構を解明するため、小角X線散乱法を用いてデトネーションナノダイヤモンド粒子の構造解析を行った。デトネーションナノダイヤモンド粒子は sp^3 炭素（ナノダイヤモンド）を核粒子、 sp^2 炭素（グラファイト状カーボン）をシェルとしたコア-シェル粒子であることが確認された。

第10章では、得られた結果を総括し、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体の特異的な吸湿性を利用した材料創製への展開、また、今後深刻化が予想される水不足を解決、水の安定的な供給を実現する材料への展開について提案し総括した。

以上のように、本論文では、デトネーションナノダイヤモンド粒子の構造や凝集体中の細孔構造、細孔内への水の吸着機構を解明し、有益な学術的知見を多数提供した。また、デトネーションナノダイヤモンド粒子凝集体への水の吸着により電気伝導性が制御できること、デトネーションナノダイヤモンド粒子ペレットが高い水へのヌレ性や水吸湿性を有していることを明らかとし、今後の水を取り巻く様々な課題を解決する材料や機能性材料としての工学的可能性を示した。以上のことから、本論文は、博士（工学）の学位論文に値するものと認める。

公表主要論文名

・ Elda-Zoraida Piña-Salazar, Toshio Sakai, Eiji Ōsawa, Ryusuke Futamura, Katsumi Kaneko. “Unusual hygroscopic nature of nanodiamonds in comparison with well-known porous materials” *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol. 549, pp. 133- 139 (2019)

・ Elda-Zoraida Piña-Salazar, Kento Sagisaka, Yoshiyuki Hattori, Toshio Sakai, Ryusuke Futamura, Eiji Ōsawa, Katsumi Kaneko. “Electrical conductivity changes of water-adsorbed nanodiamonds with thermal treatment” *Chemical Physics Letters: X*, Vol. 2, 100018,

pp. 1-5 (2019)

• Elda-Zoraida Piña-Salazar, Radovan Kukobat, Ryusuke Futamura, Takuya Hayashi, Sakai Toshio, Eiji Ōsawa, Katsumi Kaneko. “Water-selective adsorption sites on detonation nanodiamonds” Carbon, Vol. 139, pp. 853-860 (2018)

• Elda-Zoraida Pina-Salazar, Koki Urita, Takuya Hayashi, Ryusuke Futamura, Fernando Vallejos-Burgos, Jerzy Włoch, Piotr Kowalczyk, Marek Wiśniewski, Toshio Sakai, Isamu Moriguchi, Artur P. Terzyk, Eiji Osawa, Katsumi Kaneko. “Water Adsorption Property of Hierarchically Nanoporous Detonation Nanodiamonds” Langmuir, Vol. 33, No. 42, pp.11180-11188 (2017)