

# 論文内容要旨 (和文)

平成 31年度入学 大学院博士後期課程

物質化学工学専攻

氏 名 MD. MAHIUDDIN



論 文 題 目 Synthesis of bismuth nanomaterials using safe and abundant natural sources

(安全で豊富な天然資源を用いるビスマスナノ材料の合成)

本論文は、安全で豊富な天然資源を活用したビスマスナノ材料の開発について述べるものである。

第一章では、対象としたビスマスナノ材料の重要性と合成法の優位性を以下の通り述べた。ビスマスは有機及び無機化合物のいずれもが低毒性であるという安全な元素であり、安全に取り扱える元素の中で最重である。また、単純なビスマス塩の多くは安価である。一方、これまでの化学合成法をはじめとするビスマスナノ材料合成は、環境適合性などに課題がある。そこで着目したのが、安価で容易に入手できる植物資源の活用である。本研究で用いた天然資源であるレモンジュースは、還元剤を豊富に含むとともに、様々な化合物がコーティング剤となり得、優れた原料である。以上の観点から、本研究の狙いを示した。

第二章では、レモンジュースを用いたビスマスナノ粒子の合成と、得られたビスマスナノ粒子の有機色素の還元に対する触媒能の評価について述べた。硝酸ビスマスとレモンジュースの混合物を塩基性条件下で加熱すると、黒色で水に分散可能なビスマスナノ粒子が得られた。得られた粒子を、XRD、SEM、TEM、TGA、およびFTIR分光法により解析したところ、結晶性で、径が10-30nmの球状であること、および有機物でコートされていることがわかった。この有機物の構造を、抽出分離した成分のNMRおよびFTIRスペクトルから推定したところ、脂肪酸と糖類の存在が示唆された。得られた粒子の、水素化ホウ素ナトリウムを用いた4-ニトロフェノール、メチルオレンジ、メチレンブルー、およびローダミンGの還元触媒として用いたところ、各反応を加速する機能を持つことがわかった。

第3章では、レモンジュースを用いたビスマス/還元酸化グラフェンナノコンポジット (Bi/rGO) のワンポット合成とその応用について述べた。ナノコンポジットの合成に先立って、レモンジュースを用いた酸化グラフェンの還元によるrGOの合成を検討し、条件を最適化した。得られたrGOは、原料である酸化グラフェンが凝集していたのに対し、数層に剥離した薄層状の物質であった。このrGOは、メチレンブルーに対する良好な吸着能を示し、吸着したメチレンブルーを溶出後に再使用も可能であった。この結果に基づき、ビスマス塩と酸化グラフェンを同時にレモンジュースで還元すると、rGOの薄層上にビスマスナノ粒子が複合化されたBi/rGOが得られた。このBi/rGOを用いて、4-ニトロフェノールをモデルとした芳香族ニトロ化合物の水素化ホウ素ナトリウムを用いた還元反応を検討したところ、ビスマスナノ粒子およびrGO単独よりも高活性な触媒として機能することがわかった。

第4章では、本論文を総括するとともに、将来展望について述べた。

# 論文内容要旨 (英文)

平成 31年度入学 大学院博士後期課程

物質化学工学専攻

氏 名 MD. MAHIUDDIN



## 論文題目

Synthesis of bismuth nanomaterials using safe and abundant natural Sources

(安全で豊富な天然資源を用いるビスマスナノ材料の合成)

The PhD thesis describes the development of bismuth nanomaterials using safe and abundant natural resources.

Chapter 1 describes the importance of nanostructure bismuth as well as the status and problems of their synthetic approaches, especially conventional chemical methods, and possible alternatives. This chapter also describes the aim of the research.

Chapter 2 describes the synthesis of bismuth nanoparticles (BiNPs) using lemon juice and investigates their catalytic activity for the reduction of organic dyes. First, synthesis of BiNPs was achieved using lemon juice as a green reducing and capping agent in an alkaline aqueous medium. The formation of crystalline and spherical BiNPs with the size range of 10-30 nm coated by phytochemicals was confirmed by XRD, SEM, TEM, FTIR spectroscopic, and TGA analysis. Moreover, the structure of the plausible capping moieties of BiNPs was investigated by FTIR and NMR spectroscopic analysis. In addition, the catalytic behavior of the obtained BiNPs was investigated for the reduction of 4-nitrophenol, methyl orange, methylene blue, and rhodamine B using sodium borohydride, and it was found that obtained BiNPs was promisingly accelerated the reduction reaction of these compounds.



Chapter 3 describes the one-pot synthesis of bismuth/reduced graphene oxide (Bi/rGO) nanocomposites using lemon juice and their applications. Prior to moving on to the synthesis of Bi/rGO nanocomposite, synthesis of rGO was achieved using lemon juice as a reducing agent. The successful formation of exfoliated and separated few-layer rGO sheets was confirmed by UV-vis, FTIR, and Raman spectroscopy, XRD, SEM, TEM, and TGA analysis. The application of the resultant rGO as an adsorbent for organic pollutants was investigated using methylene blue (MB) as a model compound, it was found that the resultant rGO act as an excellent adsorbent with good reusability. Based on this result, one-pot synthesis of Bi/rGO nanocomposite was achieved using lemon juice as a green reducing agent. UV-vis, FTIR, and Raman spectroscopy, XRD, SEM, TEM, and TGA analysis revealed the successful formation of nanocomposite where BiNPs are anchored on exfoliated and separated few-layer sheets of rGO. The catalytic activity of the resultant nanocomposite was also investigated for the reduction of nitroaromatics using sodium borohydride taking 4-nitrophenol as a model. It was found that the Bi/rGO nanocomposite has excellent catalytic activity better than that of BiNPs.

Chapter 4 summarizes the works presented in this thesis and describes prospects.






学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

令和4年2月3日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 落合 文吾  印  
 副査 増原 陽人  印  
 副査 矢野 成和  印  
 副査 ..... 印  
 副査 ..... 印

学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

論文申請者	物質化学工学専攻	氏名	MD Mahiuddin
論文題目	Synthesis of bismuth nanomaterials using safe and abundant natural sources (安全で豊富な天然資源を用いるビスマスナノ材料の合成)		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	令和4年1月26日～ 令和4年2月3日
論文公聴会	令和4年2月3日	場 所	工学部グリーンマテリアル成形加工研究センター406
最終試験結果	合格	最終試験年月日	令和4年2月3日

学位論文の審査結果の要旨 (1,000字程度)

本論文は、豊富で安全な天然資源として特にレモン果汁を選択し、これを還元剤かつコーティング剤として用いたビスマスナノ構造体の合成について述べるものである。ビスマスは安全に扱える元素の中で最重であり、安価かつ多くの有機及び無機化合物の毒性は低い。その特徴を生かした様々な応用が行われているが、多くの合成方法は有害な試薬を用いたり、厳しい反応条件を要したりする。この問題を解決しようと試みたのが本研究である。

第一章では、ビスマスの特異性と有用性、そのナノ構造の合成法と応用に関する包括的な記載、および植物資源を活用した合成によりこれらを合成することの意義を述べ、本論文の背景と目的を明らかにした。

第二章ではレモン果汁を用いたビスマス塩の還元によるビスマスナノ粒子の合成とその応用について述べている。条件を検討し、サイズが整ったビスマスナノ粒子が効率よく得られる条件を見出している。このビスマスナノ粒子はレモン果汁成分で保護されており、NMR および IR スペクトルから保護物質を分析し、脂肪酸や多糖を含むことを推定した。また、得られたビスマスナノ粒子が、色素など芳香族化合物の還元分解の触媒として機能することを明らかとした。

第三章では、レモン果汁を用いたグラフェンオキシドの還元、およびグラフェンオキシドとビスマス塩の同時還元による、還元グラフェンオキシド (rGO) およびビスマスナノ粒子/rGO の合成とその応用について述べている。まず、グラフェンオキシドの還元では、条件を詳細に検討し、既報よりも純度の高い rGO が得られる条件を確立した。この結果を元に、rGO/ビスマスナノ粒子複合体の合成も達成しており、色素の吸着性や色素等の還元触媒能に優れることを明らかにした。

上記の研究の目的と手法の独創性、および成果の有効性は、博士論文に十分値するものであった。また、自ら研究を計画・遂行するための専門的知識を基に、論理的に記述されているとともに、設定した研究テーマに沿った明確な結論が述べられていた。学位論文の構成は適切で、体裁も整っている。これらの成果は、2報の査読付き学術論文、1報の査読付き国際学会プロシーディングとして既に発表されており、1報をさらに執筆中である。以上より審査基準を満たしていると判断し、合格と判定した。

なお、本論文は、研究倫理又は利益相反等に係る学内規則に基づく手続きは必要ない。

最終試験の結果の要旨

最終試験は、学位論文に関する事項について口頭にて行った。研究の背景となるこれまでの研究ならびに課題、研究の元となる理論的背景、および自身の研究の客観的な状況について十分に理解していると判断された。このことから、博士の学位を授与するのに十分な知識と能力を有していると判断し、最終試験を合格と判定した。