

論文内容の要旨

博士論文題目 イオン性有機化合物の吸着による低次元材料の熱電効果の増強と制御

氏名 中野 元博

(要旨)

有機 π 電子系物質は、半導体や導電体としての特性を付与することが可能で、軽量、低環境負荷、フレキシブルなど無機系半導体に対して相補的な機能材料としての活用が検討されてきた。熱電効果については荷電キャリアの極性判定の観点から計測されてきたが、近年、エネルギー変換材料としての可能性が検討されている。 π 共役高分子やナノカーボンなどの π 共役化合物は分子構造レベルの一次構造と分子鎖の屈曲や凝集などの高次構造に加えて、異種分子との相互作用に依存してその物性が大きく変化することが知られており、熱電エネルギー変換材料としての応用の可能性を検討する観点からは、基礎的な学理の解明も含めた系統的な研究が待たれてきた。

本論文では分子吸着による弱い摂動に伴う π 共役低次元材料の熱電輸送の変化と熱電エネルギー変換材料の構築を目的として実施された博士論文研究の成果について全5章により記述されており、各章ごとに下記の通り要約される。第1章では、緒言として炭素低次元材料やゼーベック効果、カーボンナノチューブ、 π 共役高分子および炭素一次原材料の熱電特性に関する概観が示され、本論文の目的と構成が提示されている。第2章ではイオン性高分子と単層カーボンナノチューブの相互作用に伴い、カーボンナノチューブの導電率とゼーベック係数が同時に増強する現象を見出し、熱電変換材料として大幅な性能向上が可能であることを提示している。第3章では単層カーボンナノチューブのイオン性液体モノマーへの分散化とその重合に取り組み、カーボンナノチューブの孤立分散化に伴う熱電変換特性の増強を見出している。第4章では π 共役高分子 PTAA の熱電変換特性の解明に取り組み、酸化ドーピングに伴う導電率とゼーベック係数の変化の相反性から熱電発電出力係数の最適化に成功している。

第5章では、本論文の総括が示されている。

以上のように、本論文ではカーボンナノチューブおよび π 共役系高分子における酸化ドーピングと分子吸着が熱電変換特性におよぼす影響を系統的に解明し優れた特性を有する熱電変換材料を提示しており、新規性と先進性の高い研究成果がまとめられている。

(論文審査結果の要旨)

有機 π 電子系物質は、半導体や導電体としての特性を付与することが可能で、軽量、低環境負荷、フレキシブルなど無機系半導体に対して相補的な機能材料としての活用が検討されてきた。熱電効果については1990年前後から荷電キャリアの極性判定の観点から計測されてきたが、2000年前後からエネルギー変換材料としての可能性が検討され、近年の環境エネルギー技術への興味から急速にその研究が拡大している。 π 共役高分子やナノカーボンなどの π 共役化合物は分子構造レベルの一次構造と分子鎖の屈曲や凝集などの高次構造に加えて、異種分子との相互作用に依存してその物性が大きく変化することが知られており、熱電エネルギー変換材料としての応用の可能性を検討する観点からは、基礎的な学理の解明も含めた系統的な研究が待たれてきた。

本論文は分子吸着による弱い摂動に伴う π 共役低次元材料の熱電輸送の変化と熱電エネルギー変換材料の構築を目的として実施された博士論文研究の成果についてまとめられている。下記の主要な成果が認められる。

1) イオン性高分子と単層カーボンナノチューブの相互作用に伴い、カーボンナノチューブの導電率とゼーベック係数が同時に増強する現象を見出し、熱電変換材料として大幅な性能向上が可能であることを提示している。さらにその原因がカーボンナノチューブへの酸化型ドーピングであることを多面的な分光計測から明らかにしている。イオン性高分子やその対イオンの効果を評価することで、作用機構についても一定の理解に至っている。最大の熱電発電出力係数として約 0.5mW/mK^2 を提示しており、これは発見当時の世界最高レベルであることから、関連分野の発展への貢献が認められる。2) イオン性液体モノマーへの分散化とその重合に取り組み、カーボンナノチューブを孤立分散化することに成功している。高度に分散化したカーボンナノチューブにおける熱電変換特性の増強を見出している。3) π 共役高分子 PTAA の熱電変換特性の解明に取り組み、酸化ドーピングに伴う導電率とゼーベック係数の変化の相反性から熱電発電出力係数の最適化に成功している。

以上のように、本論文ではカーボンナノチューブおよび π 共役系高分子における酸化ドーピングと分子吸着が熱電変換特性におよぼす影響を系統的に解明し優れた特性を有する熱電変換材料を提示している。本論文で得られた成果は物理化学、機能物性化学、エネルギー材料科学およびその関連分野の学理の深化に貢献するとともに、新しい電気エネルギー供給源の未来像を示唆するものとしてその意義は顕著と認められる。よって、審査委員一同は本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。