

氏名	まつよし ひろあき 松好 弘明
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博甲第745号
学位授与の日付	平成27年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 先端ファイブ科学専攻
学位論文題目	高機能有機・無機コーティングの特性と耐久性に関する研究
審査委員	(主査)教授 西村寛之 教授 濱田泰以 教授 木村照夫 准教授 奥林里子 大阪ガスケミカル(株) 執行役員 有機材料部門長 川崎真一

論文内容の要旨

近年、家庭用機器、工作機械、自動車やエネルギー機器などの生産性向上や環境負荷低減の観点から、簡便な工程で様々な機能が付与できるコーティング技術の高度化が進んでいる。本論文では、撥水性和非粘着性を有するコーティング膜の性能や耐久性の関係を明らかにすること、また、今後の普及が見込まれる色素増感太陽電池の光電変換効率の向上のための負極チタニア膜の界面制御の検討が行なわれた。

第2章では低温焼成フッ素樹脂コーティング膜の物性と耐摩耗性に及ぼす焼成温度の影響を調べた。焼成温度が高いほど、コーティング膜の鉛筆硬度、非粘着性、耐摩耗性が良好であることが明らかになった。第3章では有機・無機ハイブリッドコーティング膜の特性に及ぼす焼成温度の影響を調べた。メチルトリメトキシシランの加水分解と縮合反応により得られる有機・無機ハイブリッドコーティング膜を作製し、コーティング膜の物性と耐摩耗性における焼成温度の影響についてまとめた。コーティング膜の鉛筆硬度、水の接触角及びテープ剥離荷重は80~250℃の各焼成温度においてほぼ同じ値となったが、耐摩耗性については焼成温度が高いほど良好な結果となることがわかった。第4章ではメチルトリメトキシシランを出発原料としたセラミックコーティング塗料にポリ(N-ビニルピロリドン)を添加して、有機-無機ポリマーハイブリッドコーティング膜を作製した。表面粗さ分析と表面観察より、表面に凹凸の多い特異的な形状になることがわかり、撥水性が向上することを明らかにした。

第5章では色素増感太陽電池の色素の共吸着剤の効果について検討した。D908色素を用いた色素増感太陽電池の光起電力性能において、共吸着剤としてのマロン酸誘導体と酢酸誘導体の効果を調べた。フェニルマロン酸(PMA)またはシクロペンチル酢酸(CPEAA)を共吸着させると、色素の吸着量は減少したが、太陽電池の光電流と光電圧が向上することを明らかにした。第6章では色素増感太陽電池の電解液の高性能化を図るため、チタニア負極と界面を接する電解液の電解質と溶媒の高性能化について調べた。まず、ヨウ化リチウムと1-エチル-3-メチルイミダゾリウムヨージドの組み合わせで、光電変換効率は8.6%と、従来の1-メチル-3-プロピルイミダゾリウムヨージドと1-ブチル-2-メチルイミダゾリウムヨージドを使用した電解液よりも高い値になることを見出した。

第7章では色素増感太陽電池の負極材料の高性能化を図るため、カーボンナノチューブをテンプレートとして、新しい材料であるチタニアナノチューブを合成し、チタニアナノ粒子に2重量%添加した負極を用いることにより、5mm角の小型セルにて変換効率10.4%を達成することができた。チタニアナノチューブの添加により、チタニア負極内の電子の移動を促進して電子の漏れを防止し、電解液のイオン移動を促進して電子の受け渡しをしやすくし、短絡電流密度とフィルファクターを向上させることを考察し、チタニア負極材料の設計指針が得られた。

本研究で得られたフッ素樹脂コーティング、シリコン系の有機・無機ハイブリッドコー

ティング、色素増感太陽電池の負極膜などの製造条件の影響評価や最適化、添加材による高機能化や耐久性向上の方法は、有機・無機コーティングの産業分野での幅広い応用が期待される。

論文審査の結果の要旨

本論文では、撥水性と非粘着性を有する表面コーティング膜と色素増感太陽電池の負極チタニア膜のいずれにも共通するコーティング要素技術に着目して、高機能有機・無機コーティング条件が膜の特性と耐久性に与える影響についてまとめられている。これらの研究成果により、コーティング技術の高度化や色素増感太陽電池の光電変換効率の向上のための負極チタニア膜の界面制御が可能になったことは、工業的に大変意義があり、学術的な観点からも評価できる。本論文の内容は次の8報に報告されており、そのうち7報が申請者を筆頭著者とするものである。

1. 松好弘明、富田晴雄、西野 仁、阪本浩規、真鍋享平、佐々木博一、“DSC 電解液における 1,3-アルキルイミダゾリウムヨードの影響”, *Electrochemistry*, Vol.79, No.12, pp.943-946 (2011)
2. 松好弘明、富田晴雄、西野 仁、阪本浩規、真鍋享平、佐々木博一、“含窒素ヘテロ環化合物を電解液溶媒に用いた DSC の評価”, *Electrochemistry*, Vol.80, No.7, pp.512-514 (2012)
3. Hitoshi Nishino, Hiroaki Matsuyoshi, Hiroki Sakamoto, Haruo Tomita, Hirokazu Sasaki, Ryoichi Nishida, Minoru Tabuchi, and Hidekazu Hayama, “TiO₂ Nanotube Utilizing a CNT Template and Its Performance as the Anode of a Dye-sensitized Solar Cell”, *Chemistry Letters*, Vol. 41, No.1, p.56-57 (2012)
4. Hiroaki Matsuyoshi, Haruo Tomita, Hitoshi Nishino, Hiroki Sakamoto, and Kyohei Manabe, “The Effects of Malonic Acid Derivatives and Acetic Acid Derivatives as Coadsorbents on the Photovoltaic Performance of Dye-Sensitized Solar Cells”, *International Journal of Photoenergy*, Volume 2013, Article ID 439717
5. 松好弘明、川崎真一、山田和志、西村寛之、“低温焼成フッ素樹脂コーティング膜の物性と耐摩耗性に及ぼす焼成温度の影響”, *ネットワークポリマー*, Vol.36, No.1, pp.29-37(2015)
6. 松好弘明、川崎真一、山田和志、西村寛之、“有機-無機ハイブリッドコーティングの特性に及ぼす焼成温度の影響”, *マテリアルライフ学会誌* (印刷中)
7. 松好弘明、川崎真一、山田和志、西村寛之、“有機-無機ポリマーハイブリッドコーティング膜の作製と特性評価”, *ネットワークポリマー* (査読中)
8. Hiroaki Matsuyoshi, Shinichi Kawasaki, Kazushi Yamada, and Hiroyuki Nishimura, “Effects of Cycloalkylcarboxylic acid Derivatives as Coadsorbents on the Photovoltaic Performance of Dye-Sensitized Solar Cells”, *SPE-ANTEC Technical Papers*, 61, No. 2085145(2015)

以上の結果より、本論文の内容は十分な新規性と独創性、さらに工業的な意義があり、博士論文として優秀であると審査員全員が認めた。