

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	三脚型トリプチセン誘導体を用いたナノスケール熱輸送の研究
Title(English)	
著者(和文)	今泉孝規
Author(English)	Takaki Imaizumi
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京科学大学, 報告番号:甲第305号, 授与年月日:2025年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:福島 孝典,大塚 英幸,中島 裕美子,石毛 亮平,庄子 良晃
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第305号, Conferred date:2025/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	今泉 孝規		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	福島 孝典	教授	審査員	庄子 良晃	准教授
	審査員	大塚 英幸	教授			
		中島 裕美子	教授			
石毛 亮平		准教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本博士論文は「三脚型トリブチセン誘導体を用いたナノスケール熱輸送の研究」と題し、日本語で書かれ、全五章から構成されている。半導体デバイスの微小化と高性能化に伴い、ナノスケールの界面熱制御技術が益々重要になっている。これに関して、本質的に熱伝導性は低いものの、物質設計自由度が大きく、低コストで塗布が可能な有機材料への関心も近年高まりつつある。しかし、有機・高分子を用いて熱制御を実現するには、有機物質中の熱輸送を理解し、それに基づく材料設計指針を得る必要がある。しかし有機物質は、官能基、化学結合、分子間力、そして集合構造の様式など、多種多様な要素を考慮する必要があり、その複雑さゆえ、熱輸送に関する理解がほとんど進んでいないのが現状である。このような背景のもと、本研究では種々の化学修飾によっても集合構造を予測して構築可能な三脚型トリブチセンを基盤とする物質を開発し、構造-熱輸送の関係を系統的かつ詳細に調べている。本論文はそれらの結果をまとめたものである。

第一章「序論」では、ナノスケールにおける熱制御の重要性を述べるとともに、本研究で用いた熱輸送特性の評価手法と三脚型トリブチセン誘導体の性質について概説し、本研究の目的と意義について述べている。

第二章「三脚型トリブチセンが形成する高配向多層分子膜の熱伝導挙動」では、長鎖アルキル基を導入した三脚型トリブチセンが基板上で形成する高配向・高密度ナノ薄膜に対して、薄膜面外方向の熱伝導率を時間領域サーモリフレクタンス (TDTR) 法により評価した結果を述べている。また、有機-無機異種固体材料間の界面熱抵抗の評価を通じて、分子が固体基板に物理吸着するだけでは、大きな熱抵抗を生じることを見いだしている。上記の検討により、有機ナノ薄膜の熱輸送特性の評価に関する TDTR 法の有効性を実証している。

第三章「種々の三脚型トリブチセン単分子膜を用いた金/水界面熱抵抗」では、固体-液体界面熱抵抗における自己組織化単分子膜 (SAM) の効果を厳密に示すことを目的に、種々の官能基を導入した三脚型トリブチセン SAM を構築し、金/SAM/水界面熱抵抗を調べた結果について述べている。X 線光電子分光法および原子間力顕微鏡による SAM 表面の観察結果から、構築した SAM は、表面官能基の種類にかかわらず、同様の吸着密度を有することを明らかにしている。すなわち、吸着密度によらず、各種表面官能基が金/SAM/水界面熱抵抗に与える影響を直接比較検討できることを示している。接触角測定および TDTR 測定の結果、親水性表面官能基を有する SAM は界面熱抵抗を低下させるものの、分子長が長くなると、SAM 分子自体が熱抵抗を生むことを考察している。共同研究により平衡および非平衡分子動力学計算を行い、(i) 水と表面官能基の親和性、(ii) SAM の構造、(iii) 界面を形成する物質間の原子・分子振動のマッチングの三つの観点から実験結果をより詳細に議論している。その結果、水と強く相互作用し、かつ長さが短い表面官能基を用いることで、界面熱抵抗を大きく低減できることを述べている。この知見に基づき、足場分子を用いて親水性の短鎖表面官能基を固体表面に高密度に集積した SAM は、高い熱伝導性を示す界面熱材料になり得ると結論づけている。

第四章「三脚型トリブチセン誘導体の自己組織化単分子膜から成長させたポリマーブラシの熱輸送特性」では、三脚型トリブチセンを重合開始剤として表面ポリマーブラシ膜を構築し、薄膜面外方向の熱伝導率を TDTR 法により評価した結果について述べている。三脚型トリブチセンの橋頭位に原子移動ラジカル重合が可能な官能基を導入し、浸漬法によって金基板上に SAM を形成した後、高圧下で ATRP を行うことでポリメタクリル酸メチル (PMMA) ポリマーブラシを合成している。TDTR 法で求めた薄膜面外方向の熱伝導率は、スピコートで作製した PMMA 薄膜よりおよそ 20% 高い値を示した。PMMA 表面ポリマーブラシ膜のグラフト密度は、通常の重合開始剤を用いた場合とほぼ同様であることを実験的に示し、ポリマーの集合状態に関して議論している。さらに、さらなる熱伝導性の向上を目指し、高分子鎖間に水素結合の形成が可能なポリアクリルアミド (PAAm) を用いたポリマーブラシの作製についても検討している。PAAm スピコート膜の熱伝導率が PMMA より 2 倍高いことを実験的に示し、PAAm の系では熱伝導率が大幅に向上する可能性を見いだしている。

第五章「総括」では、本研究で得られた成果を総括している。

これを要するに、本研究では、構造明確な集合体を与える分子システムと精密な熱輸送計測技術を利用することで、未だ理解が進んでいない有機物質のナノスケール熱輸送の一端を明らかにした。また本研究によって解明された界面熱抵抗の官能基依存性に関する知見は、界面熱材料など、ナノスケール熱マネジメント材料の開発に向けた応用展開において重要な指針を示すものであり、工学上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) の学位論文として十分な価値があると認められる。