

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ヘテロ原子間相互作用を基盤とした燃料電池用芳香族系高分子電解質の設計・開発
Title(English)	
著者(和文)	甘利俊太郎
Author(English)	Shuntaro Amari
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10856号, 授与年月日:2018年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山口 猛央,西山 伸宏,穴戸 厚,今岡 享稔,田巻 孝敬
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10856号, Conferred date:2018/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文要約

総合理工学研究科 化学環境学専攻

甘利 俊太郎

本論文は「ヘテロ原子間相互作用を基盤とした燃料電池用芳香族系高分子電解質の設計・開発」と題し、分子間相互作用を有するヘテロ環を基盤とした高分子電解質の構造及び物性の解明と燃料電池の高性能化に向けた材料設計指針の獲得を目指した内容であり、6章より構成されている。

第1章では、燃料電池用高分子電解質に関する研究を概観し、デバイスの高性能化に向けた高分子電解質研究の課題を示した。また、高分子電解質の物性はナノレベルの構造に強く依存することを示した上で、ヘテロ環を基盤とする分子間相互作用と立体構造を協奏的に利用した分子設計は構造化を積極的に促すために有用なコンセプトであることを示した。

第2章では、強い分子間相互作用を有し、平面性の高い構造を持つベンゾチアジアゾール(BT)環を含む芳香族系高分子電解質を合成し、BT環が構造と物性に及ぼす影響を解明した。BT環を微量導入した膜中で疎水性ドメインと親水性ドメインから成る凝集構造が形成され、含水率が低下することを見出した。また、分光学的調査により、微量のBT環による構造化がプロトンキャリアであるスルホン酸基の高密度化を促し、水の少ない環境下で優れたプロトン伝導性が発現することを示した。本章での成果により、強力な分子間相互作用を示すBT環を基盤とした分子設計は電解質中の構造化を促し、優れた膨潤抑制能とプロトン輸送を両立する高分子電解質の開発に有効であることが分かった。

第3章では、BT環よりも分子同士が近接した構造を作るチアゾロチアジアゾール(TT)環を含有する高分子電解質の構造や物性を明らかにした。微量のTT環を導入することで凝集構造が形成され、スルホン酸基の集積化が進み、優れたプロトン伝導性が発現することを示した。一方、BT環を導入した系に比べ疎水性ドメインが発達せず、含水率は変化しなかった。したがって、導入するヘテロ環の種類によって、形成される凝集構造に違いが生じ、これに起因して高分子電解質の物性は変化することが明らかになった。

第4章では、親水性ドメインにおいてヘテロ環による構造化を積極的に促し、凝集構造や物性への影響を明らかにした。その過程で、プロトンキャリアであるスルホン酸基が多置換に配位したBT環を基盤とする親水性モノマー(SBT環)の合成に成功した。SBT環を微量導入した高分子電解質では凝集構造が形成されており、BT環を導入した系と比較すると、ドメインサイズが大きくなっていることから、導入するユニットの親疎水性は凝集構造の状態に影響を及ぼすことが分かった。さらに、構造化に伴ってプロトン伝導に適した構造が構築されることで、プロトン伝導性は向上することが明らかになった。

第5章では、第2章で得られた成果を活用し、含ヘテロ型高分子電解質を利用した固体高分子形燃料電池の高性能化を検討した。高い膨潤抑制能を示すBT環を疎水部に用いた高分子電解質を触媒層中のアイオノマーとして用いることで空隙が保たれ、燃料ガスである酸素の拡散が促進

されることが分かった。さらに、発電試験の結果に基づき、BT環を疎水部に用いた高分子電解質を利用することによって、従来の高分子電解質に比べ、高い出力を示す燃料電池の開発が可能であることを示した。

第6章では、本論文の成果を総括し、今後の展望を述べた。

以上、本論文は、強力な分子間相互作用と特異な立体構造の構築を促すヘテロ環を微量導入することにより、高分子電解質中の構造化と物性に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。また、開発した高分子電解質を用いることに燃料電池の高性能化にも成功しており、ヘテロ環のような分子間相互作用を示すユニットを基盤とする分子設計は高分子材料の構造化を促す新たな設計指針の確立に貢献した。