

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

|                   |  |
|-------------------|--|
| 題目(和文)            |  |
| Title(English)    | Metallization of 3D Complex Polymer Structure by Supercritical Carbon Dioxide Catalyztion  |
| 著者(和文)            | CHENGPO-WEI  |
| Author(English)   | Po-Wei Cheng   |
| 出典(和文)            | 学位:博士(工学),<br>学位授与機関:東京工業大学,<br>報告番号:甲第12550号,<br>授与年月日:2023年9月22日,<br>学位の種別:課程博士,<br>審査員:曾根 正人,CHANG TSO-FU,細田 秀樹,木村 好里,多田 英司,田原 正樹,HSU YUNG JUNG   |
| Citation(English) | Degree:Doctor (Engineering),<br>Conferring organization: Tokyo Institute of Technology,<br>Report number:甲第12550号,<br>Conferred date:2023/9/22,<br>Degree Type:Course doctor,<br>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 | Cheng, Po-Wei |                |          |
|-------------|-----|--------------------|---------|---------------|----------------|----------|
| 論文審査<br>審査員 |     | 氏名                 | 職名      |               | 氏名             | 職名       |
|             | 主査  | 曾根 正人              | 教授      |               | 多田 英司          | 教授       |
|             | 審査員 | Chang, Tso-Fu Mark | 准教授     | 審査員           | 田原 正樹          | 准教授      |
|             |     | 細田 秀樹              | 教授      |               | Hsu, Yung-Jung | WRH 特任教授 |
|             |     | 木村 好里              | 教授      |               |                |          |

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は, “Metallization of 3D Complex Polymer Structure by Supercritical Carbon Dioxide Catalyzation” (超臨界二酸化炭素触媒法を用いた3次元複雑ポリマー構造体の金属化方法)と題し, 全8章で構成されている.

第1章“General Introduction”(序論)では, フレキシブルデバイスの技術的進展を総括し, さらなる軽量化と高信頼性を実現するために, ポリマーへの金属被覆技術のさらなる進歩が必要であることを示している. その上で様々な金属被覆技術を議論し, その中での無電解めっき技術の長所と問題点を概論している. その発展のために, 無電解めっきの触媒となる有機金属錯体を超臨界二酸化炭素(sc-CO<sub>2</sub>)に溶解した溶液を利用した sc-CO<sub>2</sub> 触媒法の応用を提案し, 高い疎水性のために金属被覆が困難と知られているポリエチレンテレフタレート(PET)および 3D プリンティングポリマーに着目し, その金属被覆技術の確立に向けた研究の意義を述べている. その後, 研究目的および本論文の構成を述べている.

第2章“Sc-CO<sub>2</sub> assisted functionalization of Polyethylene Terephthalate (PET) toward flexible catalytic electrodes”(フレキシブル触媒電極を目指したポリエチレンテレフタレート(PET)の sc-CO<sub>2</sub> アシスト機能化方法)では, sc-CO<sub>2</sub> 触媒法を含む無電解めっきプロセスによって PET フィルムの機能化に成功し, フレキシブル触媒電極の調製の可能性を実証している. sc-CO<sub>2</sub> 触媒法は, ニッケル-リン(Ni-P)析出のためのパラジウム触媒としてパラジウム-ジヘキサフルオロアセチルアセトナート(Pd(hfa)<sub>2</sub>)を含む sc-CO<sub>2</sub> 中で行っている. ここで金(Au)層の析出における犠牲層として Ni-P 層を使用している. Ni-P/PET コンポジットにも無電解めっきプロセスで金を析出させたところ, 60 分の Au 析出で電気抵抗は 0.015Ωまで低下している. 尿素, アスコルビン酸, グルコースの酸化における Au/Ni-P/PET 複合体の触媒活性が確認され, バイオセンサにおける柔軟な触媒電極としての可能性を示している.

第3章“Platinum metallization of Polyethylene Terephthalate (PET) by sc-CO<sub>2</sub> catalyzation and the tensile fracture strength”(sc-CO<sub>2</sub>触媒によるポリエチレンテレフタレート(PET)の白金メタライゼーションと引張破壊強度)では, sc-CO<sub>2</sub>触媒法を用いた無電解めっきにより, PET フィルムの白金(Pt)メタライゼーションに成功している. Pt 層の厚さは, 金属析出時間 30 分後に 0.20 μm に達し, 析出時間が 60 分まで延長すると, 0.41 μm まで増加することを見出している. 作製した Pt/PET は接着試験前後で低い電気抵抗を維持し高い引張強度を示している. この結果フレキシブルエレクトロニクスの開発における sc-CO<sub>2</sub>触媒法の利点を明らかにしている.

第4章“Metallization of 3D-printed polymer via sc-CO<sub>2</sub> assisted electroless plating”(sc-CO<sub>2</sub>アシスト無

電解めっきによる 3D プリントポリマーのメタライゼーション)では、電子部品の迅速な製造の可能性を実証するために、sc-CO<sub>2</sub> アシスト無電解めっきプロセスによって 3D プリンティングされたポリマー構造のメタライゼーションを達成している。触媒化処理は、Pd(hfa)<sub>2</sub> を Pd 触媒源として sc-CO<sub>2</sub> 中で行った。Ni-P 層の厚さは、無電解めっき時間 3 分後に 1.7 μm に達し、30 分で 4.3 μm まで厚くなり、電気抵抗は 0.61 Ω から 0.03 Ω まで低下した。更に Ni-P 金属化 3D プリンティングポリマー構造体の電気抵抗はテープ接着試験後に大きく変化しないことを見出している。

第5章“Sc-CO<sub>2</sub> assisted gold metallization of 3D-printed polymer and the tensile strength”(3D プリントポリマーのsc-CO<sub>2</sub> アシスト金メタライゼーションと引張強度)では、sc-CO<sub>2</sub> アシスト無電解めっきによって Au メタライズ 3D 構造体の積層造形を実証している。Sc-CO<sub>2</sub> 触媒法により 3D プリント構造体の完全な金メタライゼーションを実現している。析出時間 45 分で金属の厚さは 1.23 μm となり、電気抵抗は 0.15 Ω に減少する。さらに、金メタライズ試料では機械的特性の強化が観察され、引張破壊強度は 47.6MPa であった。結論として、本研究で報告された金メタライズ 3D プリント構造体は、電気抵抗が低く、テープ接着試験に強く、引張破壊強度が上昇することから、電子部品への応用が期待できることを見出している。

第6章“Selective pattern achieved by sc-CO<sub>2</sub> assisted metallization of microstructure on 3D-printed polymer”(3D プリントポリマー上の微細構造の sc-CO<sub>2</sub> アシストメタライゼーションによる選択的パターン形成)では、sc-CO<sub>2</sub> アシスト無電解めっきにより、Auめっき回路製造のための積層造形の使用を実証している。sc-CO<sub>2</sub> を溶媒として利用することで、Pd 触媒は触媒化ステップで 3D プリント構造の表面と効果的に相互作用することができ、完全なAuメタライゼーションにつながることを見出している。

第7章“Effects of sc-CO<sub>2</sub> Catalyzation in Metallization of 3D Complex Polymer Structure”(3次元ポリマー構造の金属化における sc-CO<sub>2</sub> 触媒の効果)では、PET の結晶化度に対する sc-CO<sub>2</sub> 処理の効果を調べている。具体的には気体に近い密度の sc-CO<sub>2</sub> は可塑性を促進する傾向があり、その結果、非晶質領域が増加した。逆に、有機金属化合物を溶解した sc-CO<sub>2</sub> は液体溶媒に近い密度を持ち、結晶化に有効である。sc-CO<sub>2</sub> 処理による PET の結晶化度の調整は、PET の特性と用途に重要な意味を持つ。PET 中の結晶化度の存在は、ポリマー構造体の金属化に寄与することを見出している。

第8章“General conclusions”(総括)では、各章において得られた結果をまとめ、本論文の結論を述べている。

以上を要するに、本論文は、sc-CO<sub>2</sub> 触媒法を用いた3次元複雑ポリマー構造体の金属化方法に関するものである。その独創性は、今までに通常の無電解めっき法で困難であり、更に当研究室の超臨界流体技術でも困難であった PET フィルムや3D ポリマー構造体の均一かつ高い剥離強度を持つ金属被覆する新規技術を実現したことにある。すなわち、本論文において、対象となるポリマーに合わせて設計された有機金属錯体を溶解した sc-CO<sub>2</sub> 触媒法を用いることにより、高い均一性と密着強度を有する金属被覆が実現できることを示しており、軽量かつ柔軟なフレキシブルデバイスへの応用展開実現に貢献できることを示しており、工学上・工業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。