

論文審査の結果の要旨

氏名 吳 國暉 Wu, Kuo-Hui

本論文は5章からなっている。第1章は研究背景と目的、第2章はグラッシーカーボン電極上でのビス（テルピリジン）鉄ネットワーク高分子錯体の合成とその電気化学エネルギー貯蔵への応用、第3章はカーボンナノチューブとビス（テルピリジン）鉄ネットワーク高分子錯体の複合材料の合成と電気化学エネルギー貯蔵への応用、第4章は極めて長い一次元ビス（テルピリジン）金属錯体高分子ワイヤの電気化学合成とそのキャラクタリゼーションおよび電気化学的評価、第5章は研究成果の総括と展望について述べられている。以下に各章の概要を示す。

第1章では研究背景と目的について述べている。初めにビス（テルピリジン）金属の化学的性質、合成法および分子エレクトロニクス、光受容体およびセンサーなどの様々な応用について述べている。次に電極表面修飾法とそれらの性質、スーパーキャパシタの優れた特徴、および分子エレクトロニクスとその作動原理について記述している。最後に、電気化学的手法を用いて炭素上に機能性高分子錯体を合成する本研究の目的について説明している。

第2章ではグラッシーカーボン上のビス（テルピリジン）鉄ネットワーク高分子錯体の電気化学合成について述べている。最初に2個のヒドラジド基をもつビス（テルピリジン）鉄の電気化学重合に成功し、そのネットワーク高分子構造生成の反応機構について考察した。次に原子間力顕微鏡 AFM を用いて錯体修飾電極の表面構造を解析した。さらに、サイクリックボルタンメトリ、クロノクーロメトリ、クロノアンペロメトリを用いて電気化学挙動とエネルギー貯蔵能力を評価し、この新しい炭素電極に共有結合したネットワーク高分子錯体が、高いレドックス安定性と高いパワー密度をもつ優れたエネルギー貯蔵材料であることを示した。

第3章では、第2章の研究で見出したビス（テルピリジン）鉄ネットワーク高分子錯体とカーボンナノチューブの複合材料の合成とそのエネルギー貯蔵への応用について述べている。まずポラスカーボンナノチューブ電極の作製を行い、次にこの電極上でネットワーク高分子錯体の固定化反応が起こることを見出した。この高分子錯体-カーボンナノチューブ複合電極の電気化学的性質をサイクリックボルタンメトリ、クロノクーロメトリ、クロノアンペロメトリを用いて解析したところ、高分子錯体のレドックスによるキャパシタンスとカーボンナノチューブの二重層キャパシタンスが加算された優れたエネルギー貯蔵特性を持つことを明らかにした。

第4章では極めて長い一次元ビス（テルピリジン）金属錯体高分子ワイヤ

の電気化学合成とそのキャラクタリゼーションについて述べている。2個のアミノ基を有する鉄およびルテニウムのビス（テルピリジン）錯体の電気化学的重合反応に成功し、その高分子錯体の化学構造をラマン分光法で解析し、アゾベンゼンで錯体ユニットが架橋された一次元ワイヤ構造であることを明らかにした。また AFM 測定により、炭素電極上に均一な長さのワイヤが被覆されていることを観察した。この電気化学的重合反応の機構について考察し、レドックス反応によって生成したアミノラジカルのカップリング反応であるという結論を得た。次に、最長の錯体分子ワイヤの合成に挑み、長さ 14.82 μm に相当する 7410 量体のビス（テルピリジン）鉄高分子ワイヤを合成した。最後に、鉄錯体とルテニウム錯体のヘテロ接合構造を電気化学的に作製することに成功し、ユニークなレドックスダイオード特性を発現することを明らかにした。

第5章では以上の結果を総括し、今後の展望を述べている。

以上、本論文では、炭素電極上での機能性ビス（テルピリジン）金属をユニットとする高分子錯体ネットワークおよびワイヤの電気化学的合成に焦点を当てた研究を展開した。その結果、電気化学的重合反応がランダム構造の高分子だけでなく、良く配列した高分子ワイヤが修飾した電極も作製できることを示した。この論文の内容はエネルギー貯蔵材料の開発や分子エレクトロニクスへの応用に適した画期的な機能材料を固定した炭素電極材料をつくる新しい方法を提示するものであり、次世代の科学技術に貢献する成果である。本論文の第2章は前田 啓明、神戸 徹也、星子 健、Eunice Jia Han Phua、坂本 良太、西原 寛との共同研究、第3章と第4章は坂本 良太、西原 寛との共同研究であり、一部はすでに学術雑誌として出版されたものであるが、論文提出者が主体となって実験、解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。