

学位論文及び審査結果の要旨

氏 名 藤井 啓太郎

学位の種類 博士(工学)

学位記番号 工府博甲第462号

学位授与年月日 平成27年6月30日

学位授与の根拠 学位規則(昭和28年4月1日文部省令第9号)第4条第1項及び横浜国立大学学位規則第5条第1項

学府・専攻名 工学府 機能発現工学専攻

学位論文題目 固体高分子形燃料電池用非白金カソード触媒に関する研究
(Study on non-Pt cathode catalysts for polymer electrolyte fuel cells)

論文審査委員 主査 横浜国立大学 教授 光島 重徳
横浜国立大学 教授 羽深 等
横浜国立大学 教授 奥山 邦人
横浜国立大学 特任教員(教授) 石原 顕光
横浜国立大学 准教授 吉武 英昭
横浜国立大学 准教授 松澤 幸一

論文及び審査結果の要旨

本論文では、固体高分子形燃料電池用非白金カソード触媒の開発を目指し、**Pyrochlore-type lead-ruthenium oxide** における酸素還元反応の活性点及び律速過程の解明、並びにシリカ被覆による金属系触媒の高耐久化を目的とした。本論文は六章から構成されており、各章の概要は以下の通りである。

第一章では、固体高分子形燃料電池(PEFC)の利点と課題について概説し、低コスト化のために非白金カソード触媒開発が必要であることを明らかにした。

そこで、本研究では酸化物系触媒として、**Pyrochlore-type lead-ruthenium oxide ($Pb_2Ru_2O_7$)**を取り上げ、高活性化のために、活性点及び律速過程を解明することを目的とした。金属系非白金触媒については、高耐久化を目指し、シリカ被覆が耐久性、酸素還元反応(ORR)活性、物質移動特性に与える影響を明らかにすることを目的とした。

第二章では、酸素空孔量と電解質 pH が $\text{Pb}_2\text{Ru}_2\text{O}_{7-\delta}$ の ORR 活性に与える影響について解析した。酸素空孔量が多いほど触媒表面積あたりの ORR 活性が高くなり、酸素空孔が活性点であることが示唆された。

第三章では、第二章で作製した $\text{Pb}_2\text{Ru}_2\text{O}_{7-\delta}$ を PEFC の膜電極接合体(MEA)に応用し、性能を評価した。その結果、酸素分子が吸着水層を拡散して活性点に吸着する過程が、 $\text{Pb}_2\text{Ru}_2\text{O}_{7-\delta}$ における ORR の律速過程の一つになっていることが示唆された。

第四章では、 $\text{SiO}_2/\text{Pd}/\text{C}$ を開発し、性能及び耐久性を MEA にて評価した。反応条件を最適化することで、担体カーボンの導電パスを残し、Pd 粒子に選択的にシリカ層を析出させることに成功した。この結果、従来 PEFC カソードには使用できなかった非白金の金属系触媒を用い、性能を維持し耐久性を著しく向上した。

第五章では、シリカ被覆による Pd/C の高耐久化及び高活性化の要因について評価した。その結果、強酸性の MEA においてもシリカ被覆によって Pd 近傍の pH が比較的高く保持されて高耐久化を、アイオノマーの吸着被毒の影響の緩和により高活性化が達成されたことが示唆された。

第六章では、本研究で得られた知見について総括した。

本研究は、基礎的側面、応用的側面共に重要な知見を有しており、審査員全員一致のもと、博士論文として十分な内容であることを認めた。