

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Discovery of subnanoparticles for multi-electron transfer reaction
著者(和文)	ZouQuan
Author(English)	Quan Zou
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12210号, 授与年月日:2022年9月22日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山元 公寿,荒井 創,山口 猛央,和田 裕之,今岡 享稔
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12210号, Conferred date:2022/9/22, 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		ZOU Quan	
		氏 名	職 名		氏 名	職 名
論文審査 審査員	主査	山元 公寿	教授	審査員	今岡 享稔	准教授
	審査員	荒井 創	教授			
		山口 猛央	教授			
		和田 裕之	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Discovery of subnanoparticles for multi-electron transfer reaction (和訳：多電子移動反応に用いるサブナノ粒子触媒の探索)」と題し、英文で書かれており、5章で構成されている。

第1章「**Research background**」では、サブナノサイズの触媒でみられる特異性について述べている。本研究で調査の対象としている小分子の多電子移動反応(水素発生反応、酸素還元反応、酸素発生反応)を概説している。そしてこうした材料を探索するために重要となる人工知能による触媒特性のモデル化やその予測の現状について概説し、サブナノ粒子で今後こうした技術を活用した触媒の開発が必要であることを明確にしている。

第2章「**Preparation and characterization**」では、アークプラズマ蒸着法(APD)を活用した白金サブナノ粒子やその他種々の合金サブナノ粒子、および比較対象となるナノ粒子の合成を述べている。構造や特性評価を行うため、粒子は基板や電極等に直接蒸着を行うことにて行われている。得られた種々のサブナノ粒子の電子状態や構造はX線光電子分光(XPS)、走査型透過電子顕微鏡観察(HAADF-STEM)ならびにエネルギー分散型X線分光(STEM-EDS)によって調査、議論している。特に電子顕微鏡観察では本来混じり得ない白金とジルコニア(酸化ジルコニウム)が、サブナノスケールでは原子レベルで混合していることを確認している。

第3章「**Synergistic effect distinction between subnanoparticles(SNPs) and nanoparticles(NPs) for hydrogen evolution reaction(HER)**」では、水素発生反応(HER)に関して種々の金属、合金サブナノ粒子とナノ粒子の触媒特性を比較している。特に白金-ジルコニウム系のサブナノ粒子では原子同士の混合によって高い相乗効果が発現することを発見し、その理由について計算化学(DFT)や、前章で得た電子状態の議論を踏まえて考察している。また、種々の元素の組み合わせによってどのように触媒特性が向上するのか(あるいは低下するのか)を示す Synergistic effect index (SEI)を導入し、サブナノ粒子ではナノ粒子と比較して総じて相乗効果が得られやすいことを論じている。

第4章「**Machine learning (ML) accelerated discovery of SNPs for HER**」では第3章で得たナノ粒子とサブナノ粒子の HER 活性のデータをもとに、機械学習モデルの構築を試みている。粒子の組成(含まれる元素、合金比率)に関連する種々なパラメータと触媒特性との相関を調査したところ、いずれの場合も元素の仕事関数(Work function)が触媒活性の重要な説明変数になっていることが確かめられている。特にサブナノ粒子では仕事関数が占める割合が極めて多く、その他の原子半径等のパラメータはさほど重要ではないことから、活性予測がナノ粒子と比して容易であることが明らかとなっている。この点は、結晶構造をもつナノ粒子とサブナノ粒子の大きな違いであると考察されている。

第5章「**ML assisted revelation of subnanoscaling induced multifunctionalization and accelerated discovery of multifunctional SNPs**」では、第5章の機械学習モデルを拡張し、HERのみならず、酸素還元反応(ORR)と酸素発生反応(OER)の活性予測も行なっている。特に複数の反応に有効な触媒組成のグループを機械学習による分類より探索し、見出している。

以上を要するに、本論文ではサブナノ粒子触媒のスクリーニングと機械学習による特性のモデル化にはじめて成功している。こうした成果はクラスター科学の研究の新たな可能性を切り開くものであり、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ものと認められる。