

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	自動車用固体高分子形燃料電池の白金使用量低減に向けたカソード内の酸素輸送抵抗に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	小野義隆
Author(English)	Yoshitaka Ono
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9287号, 授与年月日:2013年9月25日, 学位の種類:課程博士, 審査員:伏信 一慶,齊藤 卓志,津島 将司,西方 篤,松本 英俊
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9287号, Conferred date:2013/9/25, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

(博士課程)  
Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： 機械制御システム 専攻	申請学位 (専攻分野)： 博士 (工学)
Department of	Academic Degree Requested Doctor of
学籍番号：	指導教員 (主)： 伏信 一慶 准教授
Student ID Number	Academic Advisor(main)
学生氏名： 小野 義隆	指導教員 (副)：
Student's Name	Academic Advisor(sub)

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は「自動車用固体高分子形燃料電池の白金使用量低減に向けたカソード内の酸素輸送抵抗に関する研究」と題し、全5章から構成されている。

第1章「緒論」では、次世代の自動車用エネルギー変換器としてPEFC(固体高分子形燃料電池)が注目される理由を地球環境や資源問題、社会背景を踏まえて概説し、近年のPEFCに対する積極的な研究開発による実用化検討の現状を纏め、FCV(燃料電池自動車)の課題がコストの低減に集約されつつある状況を示している。その上で、PEFCのカソードにおける白金担持量の低減と高電流密度運転の重要性を示し、本研究の目的を述べている。

第2章「カソードの白金担持量の低減による*i-V*性能低下要因の解析」では、カソードの白金担持量を低減した際の発電性能の低下要因をマクロな視点から解明することを目的とし、現象簡略化のため、均一な発電面内反応分布を模擬できる単セルと、カソード白金担持量(触媒層厚み)の異なるMEA(膜電極接合体)を用い、発電特性と輸送物性の変化を解析している。その結果、高電流密度域で、白金担持量(表面積)低減による見かけの活性低下を上回るセル電圧低下が顕在化することを明らかにしている。また、ORR(酸素還元反応)の限界電流密度法を用いた解析により、カソードの白金担持量を低減すると触媒層内の見かけの酸素輸送抵抗が上昇すること、またこの抵抗上昇は触媒層厚さ方向と局所の酸素輸送抵抗を組み合わせた簡単なモデルにより表現可能であることから、本解析結果を入力可能なMEA厚さ方向の一次元発電性能予測モデルを構築し、上記セル電圧低下現象を精度良く表現可能なことを示している。さらに電圧損失の分離解析により、白金触媒近傍の局所酸素輸送抵抗の影響が顕在化する可能性を示し、ミクロな視点からの酸素輸送抵抗解析の必要性を示している。

第3章「アイオノマが触媒層内の酸素輸送に与える影響に関する実験解析」では、触媒層内の酸素輸送抵抗、特に局所酸素輸送抵抗の発現要因を詳細に調べることを目的とし、白金触媒を取り囲むと想定される電解質(アイオノマ)と液水の影響に着目し、アイオノマの代表的構造パラメータであるEW(Equivalent weight)値の異なるカソード触媒層を用いて検討している。ORRの限界電流密度法を用いて酸素輸送抵抗を触媒層の厚さ方向成分と局所成分とに分離し、解析値と吸水量分析から見積もった酸素輸送抵抗の予測値とを比較している。結果、厚さ方向の酸素輸送抵抗値はよい一致を示すものの、局所の酸素輸送抵抗は解析値を再現できないことを見出し、バルク物性(酸素溶解度、拡散係数)から見積もったアイオノマ中の酸素輸送抵抗以外で触媒層内の吸水量と正の相関を有する因子(アイオノマ界面における輸送現象等)を新たに考慮する必要性を示している。

第4章「白金ディスク電極上のアイオノマが酸素輸送抵抗に与える影響に関する実験解析」では、アイオノマ界面での酸素輸送抵抗発現の機構解明のため、モデル電極として溶液中の白金ディスク電極を用い、表面を被覆する Nafion®アイオノマ薄膜の厚さをパラメータとした解析を実施している。解析結果はアイオノマ薄膜の厚さに依らない酸素輸送抵抗を与え、前章で示したような従来考慮されていない輸送抵抗が存在する可能性を裏付けている。併せて、液水中に溶解した酸素分子がアイオノマ中に侵入する際の見かけの溶解速度に起因する輸送抵抗の影響、もしくは、アイオノマの被覆により、ORR 中の白金有効表面積がプロトン吸脱着から見積もられる表面積よりも減少することに起因する輸送抵抗の見積もり差異の影響の存在を予測している。しかしながら本実験により得られた輸送抵抗値を用いても触媒層の測定で得られた輸送抵抗値を説明することができないことから、残りとなる液水表面の輸送抵抗が局所酸素輸送抵抗の律速因子である可能性を示している。

第5章「結論」では、これまでの章の結果を踏まえ、白金担持量の低減、及び高電流密度運転の両立に向けた、自動車用 PEFC におけるカソード触媒層の設計指針を総括している。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 2 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 2 copies of 800 Words (English).

(博士課程)  
Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	機械制御システム	専攻	申請学位 (専攻分野)： 博士 Academic Degree Requested	Doctor of	( 工学 )
学籍番号： Student ID Number			指導教員 (主)： Academic Advisor(main)	伏信 一慶	准教授
学生氏名： Student's Name	小野 義隆		指導教員 (副)： Academic Advisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words )

The title of this thesis is “A Study on Oxygen Transport Resistance in Cathode for the Reduction in Platinum Amount of Automotive Polymer Electrolyte Fuel Cells” and consists of five chapters.

In chapter1 “Introduction”, the background that cost reduction is in highest priority for commercialization of FCV (Fuel Cell Vehicle) is shown.

In chapter2 “Analysis of i-V performance loss with low platinum loading cathode catalyst layer “, analysis of i-V performance using cathode catalyst layers (CCLs) with different platinum loading is conducted. A model analysis employing estimated macro oxygen transport resistance in thickness direction of CCLs and local oxygen transport resistance around platinum surface is performed. It shows that the local resistance could dominates the i-V performance loss in high current density region of low platinum loading CCLs.

In chapter3 “Influence of ionomer on oxygen transport resistance in catalyst layers “, analysis of oxygen transport resistances using CCLs with different equivalent weight of ionomer is conducted. Model analyses using ex-situ properties show that unconsidered phenomenon such as oxygen transport at ionomer surface should be employed.

In chapter4 “Influence of ionomer on a platinum disk electrode to the oxygen transport resistance “, rotating disk electrode (RDE) analysis of oxygen transport resistance at ionomer surface is performed by use of platinum disk electrode with different thickness of ionomer film. Results give a resistance which is independent on the thickness and it could be derived from such as apparent oxygen dissolution rate from liquid water to ionomer. However, actual local resistances of CCLs is much higher than expected even if those results are applied. This indicates remaining resistance at liquid water surface could be dominant factor on the local resistance.

In chapter5 “Conclusion “, design directions of CCLs to achieve both platinum reduction and operation in high current density is summarized considering results in this thesis.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 2 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 2 copies of 800 Words (English).