

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Systematic Design of Membrane Electrode Assembly for Anion Exchange Membrane Fuel Cells
著者(和文)	杜宜
Author(English)	Yi Du
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12728号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山口 猛央,富田 育義,荒井 創,平山 雅章,黒木 秀記
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12728号, Conferred date:2024/3/26, 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	Du Yi		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	山口 猛央	教授	審査員	黒木 秀記	准教授
	審査員	富田 育義	教授			
		荒井 創	教授			
		平山 雅章	教授			

### 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Systematic Design of Membrane Electrode Assembly for Anion Exchange Membrane Fuel Cells」と題し、液体燃料を用いるアニオン交換膜(AEM)型直接ギ酸塩燃料電池(DFFC)のセル性能・耐久性の向上を目的に、エーテル結合を含まないポリフルオレンポリマーを用いた高耐久 AEM の開発および膜特性の制御、開発した AEM の特性と DFFC 性能の関係、およびアノードにおける物質移動抵抗の低減を目指し、高性能・高耐久 DFFC の設計・開発を行った内容であり、6 章より構成される。

第 1 章では、DFFC を含む AEM 型燃料電池に関して、膜・触媒材料および膜電極接合体について概観し、アルカリ環境で動作する AEM 型燃料電池では、高耐久な AEM 材料の開発が重要であること、DFFC の高出力化には膜電極接合体全体での設計が必要であることを示している。ポリフルオレン系 AEM の開発、膜特性およびアノード物質移動過程を考慮した DFFC 設計の重要性を示している。

第 2 章では、イオン交換基容量を系統的に制御したエーテルフリーポリフルオレン系電解質ポリマーを合成すると共に、AEM としてキャスト膜および多孔質基材細孔内に電解質ポリマーを充填し膜膨潤を抑制する細孔フィリング膜を開発している。開発した AEM はイオン交換基容量が低いほど膨潤が抑制され、ギ酸塩透過性が低下する。さらに、イオン交換基のカウンターアニオン種は COO<sup>-</sup>よりも OH<sup>-</sup>において膜が膨潤し、ギ酸塩透過性は上昇することを明らかにしている。エーテルフリーポリフルオレン骨格を有する AEM はアルカリ耐性と酸化耐性の両方に優れることも実証している。

第 3 章では、主鎖に  $\pi$ - $\pi$  スタック構造を導入したポリフルオレン系 AEM を開発している。この  $\pi$ - $\pi$  スタック型 AEM では、4.2 Å の層間距離を有する明確な  $\pi$ - $\pi$  スタック構造を形成し、高いイオン伝導性を維持しつつ、ギ酸塩透過性を大きく抑制することを明らかにしている。

第 4 章では、第 2 章、第 3 章で開発した AEM を DFFC に応用し、膜特性と DFFC 発電性能の関係を検討している。ギ酸塩透過性が高い AEM では、アノードからカソードに膜透過したギ酸塩がカソード触媒で反応するため開回路電圧(OCV)が低下する。低イオン交換基容量ポリマーと細孔フィリング法を組み合わせ AEM、および  $\pi$ - $\pi$  スタック型 AEM においては、透過を抑制することにより OCV 値が向上する。ギ酸塩透過度と OCV 値の定量的な相関関係、および AEM のイオン伝導度と DFFC セルのオーム抵抗値との関係を明らかにしている。AEM の膜特性が DFFC 性能に与える影響を明らかにし、高いイオン伝導性とギ酸塩透過阻止性を両立する  $\pi$ - $\pi$  スタック構造を導入した AEM が DFFC 高性能化に有用であることを実証している。

第 5 章では、高い OCV と低いセルオーム抵抗の両方を示す  $\pi$ - $\pi$  スタック型 AEM を使い、アノードでの物質移動過程を考慮した DFFC の設計開発を行っている。ギ酸塩濃度、流量等の運転条件に対する DFFC 性能の依存性を検討し、高電流密度領域ではアノード電極(触媒層+拡散層)内でギ酸塩の濃度分極が生じていることを示している。厚み、細孔径の異なる拡散層を用いた DFFC 試験を行った結果、大きな細孔径を有する拡散層において、アノードの物質移動抵抗が大幅に低減できることを明らかにしている。分子拡散により透過する従来の拡散層と異なり、大きな細孔を有する拡散層内では流れによるギ酸塩の透過を可能とし、触媒層へのギ酸塩供給が促進されるためと推測している。

第 6 章では、本論文の成果を総括し、今後の展望を示している。

以上要するに、本論文は、液体燃料(ギ酸塩)の透過を大幅に抑制した高耐久 AEM を開発し、高性能 DFFC の設計・開発に成功した内容である。AEM のギ酸塩透過性およびイオン伝導性が DFFC 性能に与える影響を明らかにし、膜材料の有用な設計指針を獲得している。さらに、拡散層の構造制御によりアノード触媒層へのギ酸塩の物質移動抵抗を大きく改善できることを示している。本研究の成果は、DFFC の高性能・高耐久化を実現する設計指針を提供しており、他の液体燃料を用いる AEM 型燃料電池や AEM 型水電解への展開も可能であるため、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価値があるものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容