

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Structural Effects of Connected Nanoparticle Catalysts on Oxygen Reduction Performance
著者(和文)	LIAOQiancheng
Author(English)	Qiancheng Liao
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京科学大学, 報告番号:甲第303号, 授与年月日:2025年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山口 猛央,多湖 輝興,横井 俊之,松本 秀行,黒木 秀記
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第303号, Conferred date:2025/3/26, 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	Liao Qiancheng		
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	多湖 輝興	教授			
		横井 俊之	教授			
		松本 秀行	教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Structural Effects of Connected Nanoparticle Catalysts on Oxygen Reduction Performance」という題目で、固体高分子形燃料電池(PEFC)用酸素還元反応(ORR)触媒の高性能化を目指し、既存触媒とは異なる、Pt 系ナノ粒子が連結したネットワーク構造を有する担体を用いないナノ粒子連結触媒に関し、その開発とナノ粒子連結触媒の構造が ORR 触媒性能に与える影響を系統的に調査した内容であり、全 5 章で構成されている。

第 1 章「Introduction」では、PEFC における ORR 用 Pt 系触媒について概観し、ORR 活性に影響する構造パラメータや触媒表面の白金格子や電子構造等の調整が ORR 活性を向上させるために重要であることを示している。また、PEFC 運転時の電位変化が引き起こす触媒劣化の課題を説明し、高耐久な触媒開発の必要性を示している。担体であるカーボンを用いない (Carbon free) ナノ粒子連結触媒の構造的独自性、およびその高活性・高耐久化の構造的要因を解明することの重要性を示している。

第 2 章「Investigation of carbon-free connected effect of Pt catalysts on ORR performance」では、Pt ナノ粒子連結触媒の特徴である、Carbon free ナノ粒子連結構造が ORR 活性に与える影響を調査している。構造因子を切り分けるために、同等の結晶子径を有する、カーボン担持 Pt ナノ粒子、カーボン担持 Pt ナノ粒子連結、Carbon free Pt ナノ粒子連結の 3 種類の Pt 触媒を合成している。その結果、カーボン担体を用いないこととナノ粒子連結構造の各々が ORR 表面比活性向上に寄与していることを見出している。Pt ナノ粒子連結部分は、局所的に歪んだ、短い格子面間隔を有することを明らかにし、この格子歪みが高活性化の一因である可能性を示している。

第 3 章「Synthesis and characterization of carbon-free connected Pt-Co nanoparticles catalysts with chemically ordered structures」では、金属組成および原子配列規則性を制御した Carbon free Pt_x-Co_{1-x} 合金ナノ粒子連結触媒を開発し、ORR 活性および負荷応答耐久性を調査している。その結果、高い原子配列規則度を有する Pt₃-Co₁ 合金ナノ粒子連結触媒が高い ORR 表面比活性と負荷応答耐久性を両立することを見いだしている。原子配列規則度が高い程、電位サイクルに対する金属溶出を抑制する傾向が確認されている。Pt₃-Co₁ 規則配列構造の上に薄い Pt リッチ層を持つナノ粒子連結表面は、安定で高い反応性を有することを示している。

第 4 章「Investigation of metal composition effect of connected Pt-alloy nanoparticle catalysts on ORR performance」では、金属組成の影響をさらに調査するために、3 元系および高エントロピー合金の Pt 合金ナノ粒子連結触媒を開発している。その結果、高エントロピー合金では、2 元系合金に比べて、原子配列規則構造の形成が促進されることを見出している。高い原子配列規則度を有する高エントロピー合金ナノ粒子連結触媒は、負荷応答電位サイクルに対して高活性な表面を維持することを示している。さらに、Carbon free Pt 合金ナノ粒子連結触媒において、格子面間隔と ORR 表面比活性の火山型の関係性を確認し、ORR に適した構造の設計指針を示している。

第 5 章「Conclusion and prospect」では、本論文の成果を総括し、各章で得られた結果を基に今後の展望を示している。

以上を要するに、本論文では、特徴的な構造を有する Carbon free Pt 系ナノ粒子連結触媒において系統的な構造制御を行い、Carbon free、ナノ粒子連結、原子配列規則性、高エントロピー合金を含む金属組成といった構造が ORR 触媒性能に与える影響を明らかにしている。本研究の成果は、次世代の PEFC 用高活性・高耐久 ORR 触媒の設計指針を提供しており、他のエネルギー変換触媒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、東京科学大学リサーチポジトリ(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で作成してください。