

# 論文審査の結果の要旨

氏名 千坂 光陽

本論文は4章からなり、第1章は序論、第2章は「有機溶媒及びMEA製作工程が触媒層構造に与える影響」という表題で実験的研究について述べられており、第3章は「カソードにおける配列型触媒層の設計」という表題で理論的研究について述べられている。第4章は結論であり、研究全体を総括している。

本論文においては、固体高分子形燃料電池における触媒層を研究の対象とし、触媒層構造と電池の性能（電流－電圧特性）の関係を実験的、理論的研究により明らかにしている。固体高分子形燃料電池は、環境負荷の少ない小型高効率エネルギー源として期待されているが、作動温度が低いことによりカソードの酸素還元反応に起因する過電圧が大きくなり、その結果、触媒層においては多量の白金触媒を担持した炭素粒子が必要となる。現在の触媒層開発においては、触媒活性を向上させること、及び触媒表面への反応物質の輸送効率を向上させることが主要な研究テーマとなっている。本論文においては主に後者の移動現象に着目し、従来一般的な方法により製作された触媒層構造の問題点を指摘し、理想的な触媒層構造を提案することを目的としている。

第2章「有機溶媒及びMEA製作工程が触媒層構造に与える影響」においては、触媒層製法の一つであるデカル法について、製作条件と最終的につくられる触媒層構造の関係を詳細に分析している。デカル法においては、最初に触媒層の構成材料である白金触媒を担持した炭素粒子やポリマーを溶媒に分散させて「触媒インク」を作成するが、この触媒インクに添加する有機溶媒の種類や量によって最終的につくられる触媒層構造が変化することを明らかにした。その上で、以下の2つの研究をおこなった。1つ目は、これまでにデカル法において使用されてきたグリセリンについて、グリセリンの添加量および除去処理が触媒層構造に与える影響、通常の製作工程により触媒層に残存するグリセリンの量、結果として得られる電流－電圧特性を実験により明らかにした。2つ目は、触媒インク溶媒としてエチレングリコール、プロピレングリコールおよびイソプロピルアルコールを用い、触媒層構造に与える影響を調べた。具体的には、触媒層製作の一工程毎に触媒層の細孔分布を計測し、有機溶媒の種類のみならず、各工程が触媒層の細孔分布に与える影響を明らかにした。また、最終的につくられる触媒層の厚みを計測し細孔容積を明らかにした。さらに、触媒インクの量（白金使用量）と電流－電圧特性の関係を明らかにした。特に低電流密度域の結果に対しては既存の経験式を用いて解析し、活性化分極と抵抗分極の大きさを定量的に評価した。

第3章「カソードにおける配列型触媒層の設計」においては、物質移動の抵抗が小さくなるように規則的に配列した触媒層を提案し、数値計算によりモデル触媒層の最適化を行った。具体的には触媒層の構成材料の配置、成分比、寸法が電流－電圧特性に与える影響を明らかにした。計算のモデルにおいては、電極反応、プロトンの移動、燃料ガ

ス（酸素）の移動を考慮し、条件により、3つのうちのいずれかが律速過程となる。計算結果によれば、触媒量（白金使用量）が多い場合、すなわち触媒層が厚く、物質流束が小さい場合、電流－電圧特性は白金使用量にあまり依存せず、最大出力密度を得る配列構造の最適化が重要となる。一方、触媒量（白金使用量）が少ない場合、すなわち触媒層が薄く、物質流束が大きい場合、電流－電圧特性は白金使用量に大きく依存し、配列構造については、小さな単位で蜜に詰めるほど性能が上がることを示した。

本論文においては、全体を通して、固体高分子形燃料電池における触媒層構造を移動現象の視点から考察し、設計製作の指針を示すことができた。従来一般的な方法により製作された触媒層構造の問題点を実験的研究により明らかにした点、および、触媒層構造の設計指針を理論的研究により提案した点が特に重要な結論である。いずれの章も論文提出者が主体的に行った研究をまとめたものである。

したがって、博士（環境学）の学位を授与できると認める。