

## 論文の内容の要旨

氏名：江 頭 雅 之

博士の専攻分野の名称：博士（工学）

論文題名：静電噴霧法を用いた直接メタノール形燃料電池用触媒薄膜作製に関する研究

近年、水素と酸素を用いて化学反応により発電を行う燃料電池に注目が集まっている。燃料電池は水素を必要とするため発電を行う際、水素を貯めたり取り出したりできる水素貯蔵技術や都市ガスなどから水素を取り出せる改質器といった設備を必要とする。そのため、水素で発電を行うにはシステムが大型になってしまう。燃料電池の種類の一つに直接メタノール形燃料電池(DMFC)がある。DMFC はメタノールを燃料として水素により発電を行う際に必要とする設備が不要となるため燃料電池の種類の中でも最も小型化しやすい特徴がある。

DMFC を市場に普及させる課題として、発電性能の低さがあげられる。発電性能が低い理由として、白金を触媒として利用するが、その表面でしか反応に寄与しないため効率が悪い。DMFC は電力を生成する際、メタノールと酸素を反応させるために白金を必要とするが、白金の表面でしか反応しない。そのため、粒子状の白金が大きいと白金の利用率が低くなり DMFC の発電性能も低くなってしまう。白金の利用率を向上させるためには、より多くの白金を使用しなければならないが、白金は高価で生産量に制約があるためコストが増加してしまうという課題が存在する。使用する白金を抑えつつ白金の利用率を向上させる方法として触媒層の表面積を増加させる方法がある。触媒層は表面積を増加させることで反応面積が増加する。それにより、発電性能も向上できるので触媒層の表面積を増加させることが重要な研究課題となっている。触媒層を作製する方法としてスプレー法やスクリーン印刷法などがあげられるが、その中でも梅田らや BENITEZ R.らが静電噴霧法と呼ばれる方法を用いて電解質膜やガス拡散層に触媒の塗布を行った。

静電噴霧法とは液体に高電圧を印加することで微小な帯電液滴を生成する方法である。静電噴霧法では生成した帯電液滴の大きさと塗布する範囲をコントロールすることができる方法である。既存の研究では、静電噴霧法を用いて固体高分子形燃料電池(PEFC)の触媒層を作製する研究が行われ、従来の手法で作製した触媒層を用いた場合の発電性能と比較すると静電噴霧法で作製した触媒層の方が発電性能が高かった。

静電噴霧法は噴霧時に堆積基板を熱処理により乾燥させて塗布された溶液中の溶媒を揮発させ薄膜を形成する。しかし、従来の研究では噴霧中における堆積基板の乾燥温度を変化させたときに DMFC の発電性能がどのように変化するのが研究されていない。

本研究は、静電噴霧法を用いて DMFC 用触媒層を作製する際の乾燥温度を変化させたときに発電性能がどのように変化するかを明らかとすることである。以下に本論文の構成を示す。

第 1 章では本研究の背景を述べ、触媒層の作製方法、静電噴霧法により触媒層を作製した研究例、本研究の目的および本論文の構成について述べた。

第 2 章では本研究で用いた DMFC の構造や DMFC の原理、他の燃料電池の紹介、静電噴霧法の原理や特徴について述べた。

第 3 章ではノズルに供給する流量を 0.5~2.0 mL/h の範囲で変化させ、各流量ごとに印加電圧を -4.0~9.0kV まで変化させたときの噴霧状態を観察した結果を述べた。その結果、流量 0.5 mL/h、印加電圧 7.0 kV~8.0 kV の電圧範囲であれば安定したコーンジェットモードが得られることがわかった。その後、得られた噴霧条件を用いて乾燥温度を変化させガス拡散層基材となるカーボンペーパーに対して静電噴霧法により触媒の塗布を行った結果を述べた。さらに乾燥温度ごとに作製した試料を SEM により表面の観察を行った結果について述べた。その結果、触媒層に堆積する粒子径は作製時の乾燥温度が高くなるにつれて小さくなっていくことがわかった。このことから、作製時の乾燥温度が高くなるにつれて触媒層の表面積も増加すると考えられる。

第 4 章では作製した試料を用いて DMFC として組み込み交流インピーダンス法によるインピーダンスの測定および I-P 特性による発電性能試験を比較した結果について述べた。その結果、乾燥温度 40~100 °C の範囲では DMFC のインピーダンスが改善され発電性能も向上したことがわかった。これは作製時の乾燥温度が高くなるにつれて表面積が増加しそれに伴い反応面積も増加したためだと考えられる。しかし、乾燥温度 120 °C ではインピーダンスである活性化損失が増大し発電性能も低下した。これは触媒層内に

存在する電解質材料が劣化したためだと考えられる。

第5章では熱による触媒層中の電解質劣化を実験的に調べた。ハケ塗り法を用いて60℃で触媒層を複数枚作製しDMFCの運転を行った。その後100℃および120℃により熱処理を加えDMFCの運転を行い、交流インピーダンス法によるインピーダンスの測定およびI-P特性による発電性能試験を熱処理を行う前後で比較した。その結果、120℃で熱処理を行った触媒層を用いたDMFCのインピーダンスが増加しI-P特性の低下の割合が100℃で熱処理を行った触媒層を用いたDMFCよりも大きいことが分かった。その結果、120℃での性能劣化は高すぎる熱によって触媒層中の電解質材料が劣化したと考える。

第6章では総括を述べた。