

論文審査の結果の要旨

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

審査委員：（主 査） 教授 中 西 哲 也

（副 査） 教授 小井戸 純 司 教授 野 村 浩 司

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ふ。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。

本研究は、触媒層の表面積を増加させる方法として、静電噴霧法を用いたものである。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かった。

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にしたものである。本論文は全6章から構成される。

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られている。

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記載されている。

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が述べられている。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を明らかにしている。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ている。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ている。結果として、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を明らかにし、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ことを明らかにしている。

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ている。結果として、乾燥温度40~100℃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することを明らかにした。その要因として、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

と考察している。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、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察している。

第 5 章では第 4 章で問題となった熱による触媒層中の電解質劣化を実験的に調べている。ハケ塗り法を用いて 60 °Cで触媒層を複数枚作製し DMFC の運転を行い、その後 100 °Cおよび 120 °C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ている。その結果、120 °C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 °Cで熱処理を行った触媒層を用いた DMFC よりも大きいことを明らかにして。結果として、120 °C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察している。

第 6 章では総括を述べている。

この成果は、生産工学，特に電気電子工学に寄与するものと評価できる。

よって本論文は、博士（工学）の学位を授与されるに値するものと認められる。

以 上

平成 30 年 3 月 8 日