



Title	Rational Interface Design in Gas-Diffusion Electrodes for Efficient Carbon Dioxide Electrolysis
Author(s)	井上, 明哲
Citation	大阪大学, 2026, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/105513
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論 文 内 容 の 要 旨

氏 名 （ 井 上 明 哲 ）	
論文題名	Rational Interface Design in Gas-Diffusion Electrodes for Efficient Carbon Dioxide Electrolysis (高効率な二酸化炭素電解のためのガス拡散電極における界面設計)
論文内容の要旨	
カーボンニュートラル社会の実現に向けて、高効率なCO₂資源化技術の確立は喫緊の課題である。一つの有力な技術として、常温・常圧で進行するCO₂の電気化学的還元（CO₂電解）が挙げられる。本技術の社会実装に向けては、様々な化学品の基盤原料となるC₂+化合物（C₂H₄, C₂H₅OH, CH₃COOH, 1-C₃H₇OH等）を、高電流密度条件で高選択的に合成することが重要である。近年、ガス拡散電極（GDE）を用い、CO₂ガスを電極触媒近傍に直接供給することで高電流密度化を実現する手法が急速に発展している。この系でのCO₂還元反応は、触媒・電解質・ガス状基質から構成される三相界面で進行する。しかしながらその構造は極めて複雑であり、三相界面に関する設計指針の一般化は進んでいない。こうした背景に鑑み、本研究では、CO₂電解におけるC₂+生成の高効率化の観点から、物質輸送（μmスケール）から触媒表面における分子変換反応（nmスケール）にわたるマルチスケールでの三相界面の理解を通じた総合的設計に取り組んだ。 ガス状基質の電解を高電流密度で進行させるためには、三相界面の厚みを増し、その実効面積を最大化することが重要である。CO₂電解では、金属ナノ粒子のような比較的親水性の高い材料から成る触媒を用いて三相界面を構築するため、電解液の過度な浸透を抑制しつつ、ガス輸送経路を安定的に確保する触媒層構造の制御が必要となる。本研究では、標準的触媒である金属銅ナノ粒子を用い、触媒層の厚みや粒子間空隙を精密に制御することで、世界最高水準の電流密度でC₂+化合物を合成することに成功した。さらに、三相界面の面積の異なる複数の触媒層を調整し、CO₂電解特性の電位依存性を解析したところ、全電位領域において電流密度は三相界面積と関連することが確認された。一方、C₂+生成物選択性は三相界面積には依存せず、印可電位のみによって決定することが明らかとなった。 以上の結果を元に、高電流密度条件下でのCO₂電解において、C₂+化合物を高い選択性で得るための三相界面に関する設計指針を提示する。さらに、本研究を通して得られた知見を踏まえ、本技術の社会実装に向けた今後の重点課題について述べている。	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (井 上 明 哲)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教 授	中西 周次
	副 査	教 授	福井 賢一
	副 査	教 授	平井 隆之
	副 査	准教授	神谷 和秀

論文審査の結果の要旨

カーボンニュートラル社会の実現に向けて、高効率なCO₂資源化技術の確立は喫緊の課題である。一つの有力な技術として、常温・常圧で進行するCO₂の電気化学的還元（CO₂電解）が挙げられる。本技術の社会実装に向けては、様々な化学品の基盤原料となるC₂₊化合物を、高電流密度条件で高選択的に合成することが重要である。従来のCO₂電解研究では、液体電解質にCO₂ガスをバブリングすることで得られる溶存CO₂が反応基質として用いられてきた。この場合、反応は触媒と電解質の二相界面で進行するため、CO₂の低い溶解度や遅い拡散が制限要因となり、得られる電流密度は数10 mA cm⁻²程度にとどまる。この制約を克服する方法として、ガス拡散電極（GDE）を用い、CO₂ガスを電極触媒近傍に直接供給する手法が近年になり急速に発展している。この系でのCO₂還元反応は、触媒・電解質・ガス状基質から構成される三相界面で進行する。本学位論文研究では、CO₂電解におけるC₂₊生成の高効率化の観点から、物質輸送（μmスケール）から触媒表面における分子変換反応（nmスケール）にわたるマルチスケールでの三相界面の理解を通じた総合的設計に取り組まれている。

第一章では、GDEを用いたCO₂電解に関する研究動向が概観されると共に、本研究の目的が示されている。

第二章では、三相界面でのCO₂電解特性の理解と制御に取り組まれている。ガス状基質の電解を高電流密度で進行させるためには、三相界面の厚みを増し、その実効面積を最大化することが重要である。CO₂電解では、金属ナノ粒子のような比較的親水性の高い材料から成る触媒を用いて三相界面を構築するため、電解液の過度な浸透を抑制しつつ、ガス輸送経路を安定的に確保する触媒層構造の制御が必要となる。本研究では、標準的触媒である金属銅ナノ粒子を用い、触媒層の厚みや粒子サイズなどの構造因子を精密に制御することで、世界最高水準の電流密度で駆動する超高電流密度CO₂電解系を構築することに成功した。また、触媒および電極の物理化学的特性とCO₂電解活性との相関把握にも取り組まれている。触媒層における粒子間空隙サイズが、電流値と強く相関することが明らかにされた。

第三章では、前章で得られた知見を活用し、炭酸緩衝液供給型CO₂電解系における三相界面の設計と制御に取り組まれている。この電解系では、カチオン交換膜を利用して局所的な酸性条件環境を構築することで、HCO₃⁻からCO₂ガスがその場生成する。本研究では、電極近傍のpH分布やその場生成するCO₂の拡散を制御するためにガラス繊維層と多孔質カーボン層を導入し、高い電流効率と電流密度の両立が達成されている。

第四章では、電気二重層における分子挙動を十分な時間・空間スケールで追跡可能な古典分子動力学計算を用い、印可電位に応じたCO₂電解反応場の分子像が明らかにされた。具体的には、電気二重層内部におけるCO₂分子と電解液由来アルカリカチオン種の空間配置に着目し、これらの印可電位依存性およびアルカリカチオン種依存性が解析され、より負の電位を印可した場合、あるいはイオン半径の大きいカチオン種（K⁺, Cs⁺）を用いた場合において、脱水和したアルカリカチオン種がCO₂分子の第一配位圏に直接相互作用可能な状態で存在する頻度が高くなることが確認された。

第五章では、高電流密度条件下でのCO₂電解において、C₂₊化合物を高い選択性で得るための三相界面に関する設計指針がまとめられている。

このように、CO₂電解系における三相界面の基本的理解と、それに基づく制御指針が示された。これは、CO₂電解の社会実装に向けての重要な基礎的知見であり、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。