

Title	Studies on Synthesis of Metal Nanoparticles by Ionic Liquid-Sputtering Method Aiming on Preparation of High-Performance Electrocatalyst
Author(s)	吉井, 一記
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/34424
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

論文内容の要旨

氏 名 (吉 井 一 記)	
論文題名	Studies on Synthesis of Metal Nanoparticles by Ionic Liquid-Sputtering Method Aiming on Preparation of High-Performance Electrocatalyst (高性能電極触媒への応用を目的としたイオン液体ースパッタリング法による金属ナノ粒子の合成に関する研究)
論文内容の要旨	
<p>本研究は、イオン液体ースパッタリング法によって金属ナノ粒子を合成し、粒子の粒径にイオン液体種が及ぼす効果について調査するとともに、得られたPtナノ粒子を炭素材料に担持することによって電極触媒として応用することを目的とした。</p> <p>第一章では、イオン液体ースパッタリング法の基礎的知見の収集を目的とした実験結果について記した。物性が未知であったホスホニウムカチオンを有するイオン液体の物性評価を行い、粘度、密度、導電率を明らかにし、現在までに報告されているホスホニウム系のイオン液体との物性の比較を行った。さらに、これらを含む20種類以上のイオン液体を用いて、Au及びPtナノ粒子を合成した。本ナノ粒子作製法がホスホニウム系イオン液体に対しても適用可能であることを初めて示した。得られた粒子の粒径とイオン液体のバルク物性の相関について考察を行い、カチオン種ごとに粘度や密度との相関があることを明らかにした。</p> <p>第二章では、イオン液体ースパッタリング法で作製したPtナノ粒子の電極触媒への応用について記した。トリメチルプロピルアンモニウムビストリフルオロメタンスルホニルアミドを用いて作製したPtナノ粒子は、グラッシーカーボン板上に加熱処理によって容易に担持可能であり、担持されたPtナノ粒子は酸性水溶液中で良好な酸素還元触媒能を示した。さらに、イオン液体ースパッタリング法で作製したPtナノ粒子は、通常担持が困難である未処理の単層カーボンナノチューブ(SWCNT)上に加熱攪拌によって容易に担持することができた。SWCNT上のPtの担持量は用いるイオン液体種によって異なることも明らかにし、XPS測定からもイオン液体がPtナノ粒子担持に重要な役割を果たしていることが分かった。作製したPtナノ粒子担持SWCNTは良好な酸素還元触媒能を示すことも明らかにした。</p> <p>第三章では、イオン液体ースパッタリング法で作製したPtナノ粒子担持炭素材料の触媒耐久性について記した。起動停止試験により、本方法で作製した試料は還元法で作製した試料と比較して試験後の電気化学的有効表面積の劣化減少が少ないことが分かった。さらに、試験後の試料について透過型電子顕微鏡観察を行うと、本方法で作製した試料は炭素担体上にPtナノ粒子が存在していることが確認され、還元法で作製した試料と遜色のない高い耐久性を示すことを明らかにした。</p>	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (吉 井 一 記)			
	(職)	氏	名
論文審査担当者	主 査	教 授	桑 畑 進
	副 査	教 授	今 中 信 人
	副 査	教 授	町 田 憲 一
	副 査	教 授	井 上 豪
	副 査	教 授	林 高 史
	副 査	教 授	南 方 聖 司
	副 査	教 授	宇 山 浩
	副 査	教 授	平 尾 俊 一
	副 査	教 授	安 藤 陽 一
	副 査	教 授	古 澤 孝 弘

論文審査の結果の要旨

本論文中に記載された内容は、イオン液体ースパッタリング法による金属ナノ粒子の合成に関するものであり、イオン液体種が粒子の粒径に及ぼす効果など、本方法の基礎的知見を与えている。加えて、本方法で合成したPtナノ粒子を炭素材料に担持することによって電極触媒を調製し、その触媒能の評価を行っている。主な結果を要約すると以下の通りである。

- 20種類以上のイオン液体を用いて、イオン液体ースパッタリング法によりAu及びPtナノ粒子を合成し、得られた粒子の粒径とイオン液体の物性の関係についての考察を行っている。新規なホスホニウムカチオンを有するイオン液体については、物理化学的性質を明らかにするとともに金属ナノ粒子の合成へと適用している。結果として、アンモニウム、イミダゾリウム、ピロリジニウムをカチオンに有するイオン液体を用いた場合、粒径は粘度やモル密度と相関があることを明らかにしている。
- イオン液体ースパッタリング法によって作製したPtナノ粒子の炭素材料への担持と電極触媒への応用を行っている。グラッシーカーボンや単層カーボンナノチューブ(SWCNT)にPtナノ粒子を含むイオン液体を加えて攪拌し、加熱することで炭素材料上にPtナノ粒子を容易に担持できることを明らかにしている。SWCNT上へのナノ粒子担持については、イオン液体種によってPtナノ粒子の担持量が変化することや、X線光電子分光分析により、イオン液体が担持に重要な役割を果たしていることを明らかにしている。
- Ptナノ粒子を担持したSWCNTやカーボンブラックを用いて、電気化学的な負荷応答試験を行うことで、燃料電池用電極触媒としての耐久性の評価を行っている。イオン液体ースパッタリング法を用いて作製した試料は、市販の燃料電池用触媒と比較して高い耐久性を示すことを明らかにした。試験後の透過型電子顕微鏡観察からも、本方法で作製した試料は担体上にPtナノ粒子が存在していることも確認している。

以上のように、本論文は、イオン液体ースパッタリング法による金属ナノ粒子における基礎的知見の収集を行うとともに、合成したPtナノ粒子の電極触媒へ応用や触媒耐久性について詳細に検討している。本研究で得られた知見は、イオン液体を用いた金属ナノ粒子をはじめとするナノ材料開発の発展に大きく貢献できるものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。