



Title	リン酸型燃料電池用電極触媒に関する基礎研究
Author(s)	本地, 章夫
Citation	大阪大学, 1989, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/36780
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 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

氏名・(本籍)	ほん 本	じ 地	あき 章	お 夫
学位の種類	工	学	博	士
学位記番号	第	8884	号	
学位授与の日付	平成元年11月1日			
学位授与の要件	学位規則第5条第2項該当			
学位論文題目	リン酸型燃料電池用電極触媒に関する基礎研究			
論文審査委員	(主査)			
	教授	米山	宏	
	(副査)			
	教授	足立 吟也	教授 池田 功	教授 野村 正勝
	(副査)			
	教授	岡原 光男	教授 永井 利一	

論文内容の要旨

本研究は、リン酸型燃料電池の作動特性にもっとも深いかわりを有する電極触媒について行った研究の成果をまとめたもので、7章から成っている。

第1章では緒論として本研究の背景および目的を述べている。

第2章では、反応ガスである酸素、並びに反応生成物である水蒸気と3種類の炭素担体との反応性を検討し、黒鉛化が進み、かつ結晶子径が大きい炭素粉末が、酸素および水蒸気との反応の速度定数が小さく、安定であることを明らかにしている。

第3章では、電池を長時間運転したときの性能低下の一因となる炭素担体に担持された白金粒子の凝集の機構について検討している。数個の白金粒子が集まって形成される集落が白金粒子の溶解・再析出によって一つの大きな粒子に変化することによって凝集が進行することを見出し、白金の凝集は電位に依存し、可逆水素電極基準で0.8Vよりも貴な電位ではとくに顕著に起こることを明らかにしている。白金の凝集の抑制のためには白金粒子が集落を形成しないようにすること、すなわち白金粒子の分散性向上が必要であるとの結論を得ている。

第4章では、白金の分散性向上を図ることを目的としてボールミルにより粉碎して比表面積を増大させた炭素担体への白金の担持効果を調べている。ボールミル粉碎により比表面積を約2倍に増大せしめた炭素担体を用いても白金の分散性は向上せず、逆に低下する結果を得ている。その原因としてボールミル粉碎により炭素担体表面の水酸基が消滅していることを見出し、白金の分散性には担体表面水酸基の寄与がきわめて重要な役割を演じていることを明らかにしている。

第5章では、白金の分散剤として用いる界面活性剤を検討している。白金粒子の分散性は、ソルビタ

ンのモノラウリン酸エステル、モノオレイン酸エステル、およびトリオレイン酸エステルを用いた場合にもっとも優れ、これらの場合には白金粒子径が30 Å、白金比表面積が約150 m²/g のものを調製できることを明らかにしている。

第6章では、ソルビタンのモノラウリン酸エステルを用いて最適な触媒調製条件の検討を行っている。触媒調製時の界面活性剤濃度と触媒調製後の予備焼成濃度を最適化することによって作製した白金担持炭素電極は、205°Cのリン酸溶液中で可逆水素電極基準で0.8Vの電位下で約400時間の動作試験でも触媒としての白金粒子の凝集が起こらないことを明らかにしている。

第7章では本研究で得られた結果をまとめている。

論文の審査結果の要旨

燃料電池はエネルギー変換効率が高く、かつ環境調和性に優れており、早急な実用化が望まれている。なかでもリン酸型燃料電池は実用化が最も早い燃料電池として期待されている。

本研究は実用化のうえで重要な電極触媒の安定性の向上について行った研究を取りまとめたものであり、得られた成果を要約すると次の通りである。

- (1) 白金触媒担持の炭素担体としては、黒鉛化が進みかつ結晶子径の大きい炭素粉末が安定であることを明らかにしている。
- (2) 電池を運転したときに生じる炭素担体に担持された白金粒子の凝集の機構として、集落を形成している数ヶの白金粒子の溶解・再析出によって大きな粒子に変化することを見出している。また、このような凝集は電極電位が可逆水素電極基準で0.8Vよりも正のときに顕著に起こることを明らかにしている。
- (3) 炭素担体表面の水酸基が白金を担持したときの分散性に重要な役割を演じていることを明らかにしている。
- (4) 白金担持に際して界面活性剤としてソルビタンのモノラウリン酸エステル、モノオレイン酸エステルおよびトリオレイン酸エステルを用いると白金粒子径が約30 Å、白金比表面積が約150 m²/gの分散性の優れた担持が行えることを見出している。
- (5) 界面活性剤にソルビタンのモノラウリン酸エステルを用いて最良の触媒調製条件下で調製した白金担持炭素電極は205°Cのリン酸溶液中で可逆水素電極基準で0.8V 下約400時間の作動試験でも白金粒子の凝集が起こらないことを見出している。

以上のように本論文はリン酸型燃料電池の開発のうえで必要不可欠な、分散性に優れかつ作動に際して安定な白金触媒担持炭素電極の調製法について多くの知見を与えており、工業電気化学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。