

## 論文審査の結果の要旨および担当者

|      |               |
|------|---------------|
| 報告番号 | ※ 甲 第 11454 号 |
|------|---------------|

氏 名 HYUN Koangyong

### 論文題目

Synthesis and Characterization of Hetero Nano Carbon for  
Electrocatalysts by Solution Plasma  
(ソリューションプラズマによるヘテロナノカーボン電池触媒の合成  
と評価)

### 論文審査担当者

|    |        |     |                  |
|----|--------|-----|------------------|
| 主査 | 名古屋大学  | 教授  | 齋藤 永宏            |
| 委員 | 名古屋大学  | 教授  | 市野 良一            |
| 委員 | 名古屋大学  | 講師  | LI Oi Lun Helena |
| 委員 | 名古屋大学  | 准教授 | 竹岡 敬和            |
| 委員 | 東京工業大学 | 教授  | 大竹 尚登            |

## 論文審査の結果の要旨

HYUN Koangyong君提出の論文「Synthesis and Characterization of Hetero Nano Carbon for Electrocatalysts by Solution Plasma(ソリューションプラズマによるヘテロナノカーボン電池触媒の合成と評価)」は、燃料電池電極触媒への応用を目指したヘテロカーボン系触媒の開発を行い、従来のソリューションプラズマプロセスでは、合成できていなかった導電性の高いカーボン系材料の合成とその触媒性に関する論文である。本博士論文の構成は、以下の通りである。

第一章では、燃料電池の原理や構成と、白金触媒材料の課題が述べられており、白金代替材料としてカーボン系触媒が挙げられることを述べている。また、従来のカーボン系触媒の作製方法に対して、ソリューションプラズマを用いることの利点を示し、本研究の目的と意義を述べている。

第二章では、高繰り返し周波数電源を用いたソリューションプラズマによるヘテロナノカーボンの合成について述べている。繰り返し周波数を200kHzまで増加させることでエネルギーフラックスを大きくした条件で、カーボン材料の合成を行っている。アニリン原料から合成を行い、周波数が高くなるほど、導電性の高いカーボン材料が合成できることを示している。導電性が向上した要因として、繰り返し周波数を高くすることで、水素/炭素比率が低下したことや、結晶性が向上したことを元素分析、TEM、ラマン分光分析から明らかにしており、意義のある結果を得ている。

第三章では、N-メチル-2-ピロリドン为原料としてソリューションプラズマによりヘテロナノカーボンシートが合成されることを明らかにした。ベンゼンやピリジン等の溶媒を用いると、球状のカーボン材料が合成されるのに対して、N-メチル-2-ピロリドンを用いることで、グラフェン状の数層のヘテロナノカーボンシートが得られることを発見した。TEM、XRD、ラマン分光分析により結晶性の評価を行い、高い結晶性を有するグラフェンが乱層構造をとっていることを明らかにしている。これまでに報告されたヘテロカーボン系材料と比較しても高い導電性が得られており、電極材料への応用において意義のある結果を得ている。

第四章では、酸素還元反応触媒に向けたフタロシアニン含有ヘテロカーボンナノシートの合成を行った。酸素還元反応触媒サイトとして機能する鉄フタロシアニンをベンゼンおよびN-メチル-2-ピロリドン溶液に加えて、ソリューションプラズマにより合成した。合成したカーボンは、層状のナノシート構造となっていることをTEM、XRD、ラマン分光分析から明らかにした。酸性環境下における酸素還元反応を評価したところ、N-メチル-2-ピロリドン溶液で合成したものが触媒性を示すことを明らかにした。白金には及ばないものの触媒サイトをソリューションプラズマでカーボン材料中に埋め込み、触媒性が示されることを明らかにした。このように、材料デザインができることを示し、意義のある結果を得ている。

第五章では、結論を述べている。

以上のように本論文では、ソリューションプラズマによるヘテロカーボン電池触媒の合成方法と触媒性に関する知見が得られた。本研究は、燃料電池の白金代替触媒の開発において重要であり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者であるHYUN Koangyong君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。