

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 12511 号
------	---------------

氏 名 LEE Seunghyo

論文題目

Solution Plasma Synthesis of Heterographene for Energy Conversion System

(ソリューションプラズマによるエネルギー変換用ヘテログラフェンの作製)

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	教授	北 英紀
委員	名古屋大学	教授	則永 行庸
委員	名古屋大学	教授	後藤 元信

論文審査の結果の要旨

LEE Seunghyo君提出の博士論文「Solution Plasma Synthesis of Heterographene for Energy Conversion System(ソリューションプラズマによるエネルギー変換用ヘテログラフェンの作製)」は、ソリューションプラズマ発生機構の改善、改善されたソリューションプラズマ源による窒素ドーピンググラフェン及び窒素・ホウ素ドーピンググラフェンの合成、合成物の酸素還元触媒性能の評価を行い、白金代替触媒としての可能性を議論している。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、金属空気電池、燃料電池の機構及びそれら必要とする触媒について示している。従来の酸素還元触媒では、白金及び白金合金が用いられることが一般的である。この白金の使用がエネルギー変換デバイスとしての高コスト化を招いている。このため、白金低減、最終的には、白金不使用とする技術革新が必要である。そこで、本博士論文では、白金フリー触媒として窒素ドーピンググラフェン及び窒素・ホウ素ドーピンググラフェンの合成を試みている。

第2章では、窒素ドーピンググラフェン及び窒素・ホウ素ドーピンググラフェンの合成の前段階として、ソリューションプラズマの発生源について問題点を示し、電気回路的な観点からの改善を図っている。具体的には、ローパスフィルターを挟むことにより、プラズマを安定化させ、カーボンの結晶性が向上することを示している。

第3章では、安定化させたソリューションプラズマ源を用いて、窒素ドーピンググラフェンの合成を行なっている。安定化させたソリューションプラズマ源を用いた場合、結晶性の窒素ドーピンググラフェンを得ることができるが、安定化させない場合は、アモルファスの窒素ドーピンググラフェンが得られている。さらに、得られた窒素ドーピンググラフェンに対し、酸素還元触媒性能を調査するためサイクリックボルタモグラムによる評価を行なっている。この評価から、結晶性の窒素ドーピンググラフェンは、高い触媒性と耐久性を示す。しかし、アモルファスの窒素ドーピンググラフェンは、耐久性は有するものの触媒性能は低い。回転ディスク電極計測から、電子移動数を算出している。それによると、結晶性のもので3.8、アモルファスのもので2.9であった。この比較においては、結晶性窒素ドーピンググラフェンは、高い酸素還元性能を有することがわかった。

第4章では、窒素とホウ素を同時ドーピングしたグラフェン材料の合成を提案している。窒素は価電子数5であるのに対し、ホウ素は価電子数3である。このため、窒素ドーピンググラフェンの電子状態をチューニングするために、ホウ素の同時添加が有効であると提案している。特に、窒素とホウ素が隣接する場合と隣接しない場合において、触媒性能が異なるのではないかと予測しており、この点についても実際に合成により実験的に確認をしている。合成した結果、窒素とホウ素を同時にドーピングしたグラフェンは、窒素ドーピンググラフェン、ホウ素ドーピンググラフェンと比較し、触媒性能が高いことを明らかにしている。また、窒素・ホウ素ドーピンググラフェンでは、窒素とホウ素が隣接しない配置の場合に、その触媒性能が高いこと示している。しかし、回転リングディスク電極で電子移動数を算出したところ、最も高い窒素・ホウ素ドーピンググラフェン（隣接なし）においても3.43であり、白金の3.84には及んでいない。結果として、白金の触媒性能には及ばないという結果になっているが、同時に、白金フリー物質としては極めて高い触媒性能を示すことを明らかにしている。

第5章では、本研究の結論を取りまとめている。ソリューションプラズマを用いて、窒素及びホウ素をドーピングすることにより酸素還元触媒の開発に成功している。特に、窒素とホウ素を同時にドーピングした場合であって、窒素とホウ素が隣接しない配置でグラフェンにドーピングされている物質は高い酸素還元触媒性能を示す。

以上より、本博士論文は、窒素・ホウ素ドーピンググラフェンの合成に成功し、酸素還元触媒性能を示すこと、さらに、ヘテロ原子の配置と触媒性能の関係を明らかにしており、これらの解明点は、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LEE Seunghyo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。