

# Development of Non-noble Multimetal-electrocatalysts and Application to Water-splitting Reaction

著者	Chen Hanlin
発行年	2022-09-26
その他のタイトル	非貴金属系の多金属電気化学触媒の開発及び水分解反応への応用
学位授与番号	17104甲生工第445号
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10228/00009015">http://hdl.handle.net/10228/00009015</a>

氏名	CHEN HANLIN (中国)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	生工博甲第445号
学位授与の日付	令和4年9月26日
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	Development of Non-noble Multimetal-electrocatalysts and Application to Water-splitting Reaction (非貴金属系の多金属電気化学触媒の開発及び水分解反応への応用)
論文審査委員会	委員長 准教授 村上 直也 教授 パンディ シャム スディル " 馬 廷麗 " 早瀬 修二

## 学位論文内容の要旨

本論文は水の電気分解ための高性能かつ低コストの非貴金属触媒の開発に関する研究結果を報告している。新しく合成されたヘテロ接合構造を有する  $\text{Fe}_x\text{S}_y/\text{WS}_2$  のナノシート触媒は水の電気分解反応 (HER) および尿素酸化反応 (UOR) において、優れた触媒活性を示したことを記載している。さらに触媒活性を高めるために、Ni、Fe、Co、Mn、およびCuの5つの金属を含む高エントロピー合金の合成を試みている。その結果これらの5つの金属元素をキレート化した後に焼成することにより高エントロピーの単相合金が作製できたことを述べている。得られた多金属電極触媒  $\text{NiFeCoMnCu}$  は HER 及び OER 反応において、従来の  $\text{Pt}/\text{C}-\text{RuO}_2$  より高い触媒活性を有することがわかった。また、合成した  $\text{NiFeCoMnCu}$  触媒は成分が複雑な海水の電気化学分解においても優れた HER 活性及び安定性を示したことを記載している。

第1章では、電気化学的水分解プロセス中の OER と HER 及びそれらのメカニズム、更に OER と HER 用の遷移金属電極触媒の開発状況について紹介している。

第2章では、新しいバイメタルヘテロ接合  $\text{Fe}_x\text{S}_y/\text{WS}_2$  ナノシート ( $\text{Fe}_x\text{S}_y/\text{WS}_2$  Ns) をインターフェースエンジニアリング技術を用いて合成している。合成された  $\text{Fe}_x\text{S}_y/\text{WS}_2$  Ns は、 $10 \text{ mA cm}^{-2}$  で  $118 \text{ mV}$  の過電圧の HER 活性を示している。さらに、OER を尿素酸化反応 (UOR) に置き換えることにより、印加電圧を  $147 \text{ mV}$  まで下げられることを記載している。

第3章では、電極触媒活性を比較するために、Ni、NiFe、NiFeCo、NiFeCoMn、およびNiFeCoMnCu

の一連の非貴金属遷移金属電極触媒を簡単なクリティカル酸キレート法により合成したことを説明している。得られたすべての電極触媒を OER および HER の触媒活性を評価したところ、高エントロピー合金である NiFeCoMnCu は、 $10 \text{ mA cm}^{-2}$  において、過電圧はそれぞれ 240 mV および 165 mV であり、従来の貴金属触媒より小さくなっていることがわかり、優れた OER および HER 活性を有することを報告している。

第 4 章では、得られた NiFeCoMnCu HEAs 触媒を電気化学的水分解に応用した結果を記載している。この触媒は 10 時間の連続水分解でも、優れた安定性を有することが確認されている。さらに、海水の電気化学的分解反応において、1.8 V で  $10.5 \text{ mA cm}^{-2}$  の高い電流密度が得られたことを報告している。

最後に、この論文の結論及び将来の展望を記載している。低コストの複数の金属元素からなる高エントロピー合金は従来の貴金属触媒より優れた触媒活性及び安定性を示し、酸化還元触媒として有望であると結論している。

## 学位論文審査の結果の要旨

この論文に関し、論文審査委員から、非貴金属系の高エントロピー合金触媒の合成方法と触媒性能の向上メカニズム及び研究の新規性などについて質問がなされ、いずれも著者から明確な回答が得られた。

また、公聴会においても、多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上により、論文審査及び最終試験の結果に基づき、審査委員会において慎重に審査した結果、本論文が、博士（工学）の学位に十分値するものであると判断した。