革新的 GX 技術創出事業(GteX) チーム型研究 「水素」領域 年次報告書 令和 6 年度 研究開発年次報告書

令和6年度採択研究開発代表者(チームリーダー)

[研究開発代表者(チームリーダー)名:稲葉 稔]

[同志社大学理工学部・教授]

[研究開発課題名:革新的材料による次世代燃料電池システムの構築]

実施期間 : 令和6年4月1日~令和7年3月31日

# §1. 研究開発実施体制

- (1) PEMFC グループ
  - ①グループ参画者

グループリーダー: 稲葉 稔(同志社大学理工学部、教授)

主たる共同研究者: 古川 森也 (大阪大学大学院工学研究科、教授)

山元 公寿(東京科学大学科学技術創成研究院、教授)

加藤 南 (産業技術総合研究所電池技術研究部門、主任研究員)

白旗 崇 (愛媛大学理工学研究科、准教授)

朝岡 賢彦(技術研究組合 FC-Cubic FC 特性解析部、部長) 白仁田 沙代子(長岡技術科学大学大学院工学研究科、教授)

松田 翔風(弘前大学大学院理工学研究科、助教)

衣本 太郎 (大分大学理工学部、教授)

## ②研究項目

- ・Pt 系多元素合金触媒開発/ヘテロ元素含有炭素とのハイブリッド化
- ・サブナノ合金 ORR 触媒開発
- ・プロトン伝導性マイクロポーラスポリマー(MPP)の開発
- ・中電密性能支配因子の解明/触媒層最適化
- ・窒素熱処理ステンレス鋼セパレータ開発/AEMFC 用セパレータ開発
- ・IL-FE-SEM による Pt/C 触媒 AI 劣化解析

#### (2)AEMFC グループ

①グループ参画者

グループリーダー: 山口 猛央 (東京科学大学総合研究院、教授)

主たる共同研究者: 冨田 育義 (東京科学大学物質理工学院、教授)

難波江 裕太(東京科学大学物質理工学院、准教授)

守谷 誠(静岡大学学術院、准教授)

大山 順也(熊本大学大学院先端科学研究部、准教授)

# ②研究項目

- ・高性能アニオン交換膜形燃料電池の開発
- ・非白金アノード・カソード触媒の開発

# (3)PCFC グループ

①グループ参画者

グループリーダー: 奥山 勇治(宮崎大学工学教育研究部、教授)

主たる共同研究者: 松井 敏明(京都大学大学院工学研究科、准教授)

山崎 仁丈 (九州大学エネルギー研究教育機構、教授)

#### ②研究項目

- ·SOFC 超低温作動化を目指した PCFC の開発
- •超低温動作プロトン伝導性酸化物電解質の加速的開発

## (4)システム化グループ

①グループ参画者

グループリーダー: 金坂浩行(技術研究組合 FC-Cubic FC 特性評価部、部長)

#### ②研究項目

・共通セル解析による燃料電池開発支援

## (5) 先端計測・データ科学グループ

①グループ参画者

グループリーダー: 石川 敦之 (東京科学大学環境・社会理工学院、准教授)

主たる共同研究者: 今井 英人(技術研究組合 FC-Cubic 高度材料解析部、部長)

中田 彩子(物質・材料研究機構ナノアーキテクトニクス材料研究セ

ンター、主幹研究員)

### ②研究項目

- ・先端計測による燃料電池解析支援
- ・大規模計算とデータ科学による燃料電池開発支援

## §2. 研究開発成果の概要

① PEMFC グループ

多元素合金触媒  $Pt_3(Fe_{0.25}Ni_{0.25}Co_{0.25}Cu_{0.25})/C$  の合成に成功し、 $Pt_3Ni/C$  の約 3 倍の質量活性 (1000~A~g-Pt- $^1$ (@0.9~V(vs.~RHE))を達成した。担体開発では酸化グラフェン(GO) 担体に加え、ゼオライト様イミダゾレート構造体 (ZIF) の熱処理による多孔性窒素置換炭素担体の開発を開始した。Pt サブナノ粒子触媒では C 担体に対する担持量を最大 15wt%まで担持量を向上させることに成功し、423~A~g- $^1$ Pt の高い質量活性が得られた。

マイクロポーラスポリマー(MPP)電解質では Nafion212 に比べ高いヤング率(2735 MPa)、60°C-90°C、100%RH において Nafion212 よりも高いプロトン伝導性(90°C: 194 mS/cm)を示す自立膜が得られた。

MEA 解析技術としては、発電時の電位環境において触媒被毒により低下した有効触媒表面積の見積もり、発電時水生成の環境下での触媒層プロトン抵抗による過電圧の見積もり、担体スケールのガス拡散抵抗の切り分けが可能になった。

窒素熱処理ステンレス鋼セパレータ開発では、ステージゲート(SG)目標である 0.8~V での腐食電流密度  $1~\mu A~cm^2$ 以下、界面接触抵抗(ICR)では SG 目標である  $20~m\Omega~cm^2$ 以下を達成した。IL-FE-SEMではNafion117膜を用いる固体セルの構築を行い、劣化試験後にIL-FE-SEM観察が可能となった。AI 解析では粒子検出によって、サイクリックボルタモグラムでの ECSA 値とAI 解析で見積もった ECSA 値の一致性に関して劣化前評価では十分な解析精度が得られた。

#### ② AEMFC グループ

アニオン交換基として、全芳香族置換ホスホニウムカチオンの分子設計を系統的に推進し、芳香環上の置換基として電子供与性であり、かつ脱離能の低いアミノ基を付与した官能基が、一般

的なベンジルトリメチルアンモニウム (BTMA) の約 1000 倍の耐アルカリ耐性を持つことを確認した。ポリエチレン多孔質基材 (9  $\mu$ m、45%空孔率)に高イオン交換容量 (IEC) を有するポリマー (IEC = 3.2 meq/g)を充填したアニオン交換膜(厚み: 12  $\mu$ m)が、80°C、80% RH で 47 m $\Omega$  cm² のイオン伝導抵抗が得られ、2025 年度 SG 目標を達成した。

また、カソード触媒開発では十四員環 Fe 錯体をカーボンに担持し熱処理した触媒が、白金系触媒を上回る耐久性を有することを明らかにし、アノード触媒ではカーボンの表面構造によって Ni ナノ粒子の構造が異なり、それによって水素酸化活性が大きく変わることを明らかにした。

## ③ PCFC グループ

300℃でプロトン伝導率 0.01 S cm<sup>-1</sup>を超える BaZrO<sub>3</sub> 系電解質を用いて、テープ成形法によりアノード支持型燃料電池の構築を行った。最大出力は 700℃で 275 mW cm<sup>-2</sup>、400℃で 21 mW cm<sup>-2</sup> が得られた。また、実験データ入力に伴い、多元金属酸化物状態図や構造—機能マップ、有望候補組成が自動的に可視化され、インタラクティブに操作できる MDI 環境 ver.1.0 を構築した。④ システム化グループ

2024 年度は新規に導入する単セル評価装置、MEA 試作装置導入のために必要なインフラ設備の設置および装置導入を進めた。MEA 試作用のスプレー塗工装置、単セル評価装置のインフラ設備についてもそれぞれの装置の導入時期に合わせて整備を行った。既存の単セル評価装置を使って大学等のアカディミアで実際に実施する実験条件を想定して標準的な材料を用いて性能評価を実施し、チームミーティング等で結果について報告を行った。

# ⑤ 先端計測・データ科学グループ

FC-Cubic の山梨研究拠点に、高感度分析 TEM を導入し、汎用的な触媒の構造解析、触媒/担体の 3D 計測を進めている。 先端放射光計測では、2024 年度から新たに稼働した 3 GeV 高輝度放射光施設 NanoTerasu の活用を開始し、SAXS、STXM のトライアル測定を行った。

計算科学では、Pt クラスターの還元による劣化を検討するため、昨年度に得られた Pt クラスター安定構造をもとに、O や OH、 $H_2O$  吸着の粒子サイズや吸着サイト依存性を計算し、従来の DFT 計算で報告されているバルク表面での吸着構造とは異なり、ナノ粒子のエッジへの分子吸着が優位であることを示した。また、AEMFC グループと協力して、AEMFC カソード触媒に対して第一原理計算により酸素還元反応(ORR)の反応ギブスエネルギーを算出して触媒活性を算出するプログラムを作成し、AEMFC グループで検討しているペロブスカイト型酸化物触媒への試験的適用を行なった。また、PCFC のアノード触媒を対象に、プロトン電解質と金属触媒の混合物(サーメット)を想定した計算モデルを作成し、 $H_2$  分解反応に対して ①活性サイトの決定、 $2H_2$  解離および H 拡散の活性化エネルギーの算出、を実行した。

### 【代表的な原著論文情報】

- 1) T. Imai, R. Hifumi, S. Inagi, I. Tomita, "Synthesis of Triarylsulfonium Salts with Sterically Demanding Substituents and Their Alkaline Stability", *J. Org. Chem.*, 2025, 90, 9, 3420–3427.
- 2) R. Hifumi, Y. Toyama, K. Ikeda, T. Hashimoto, T. Imai, S. Inagi, I. Tomita, "Tetraarylphosphonium Cations with Excellent Alkaline-Resistant Performance for Anion-Exchange Membranes", *ChemSusChem*, 2025, e202402366.
- 3) S. Kuretani, K. Hori, T. Hirai, N. Ohta, K. Hatakeyama-Sato, T. Hayakawa, Y. Nabae. "Small-angle X-ray scattering analysis of poly(amic acid) dispersed in a liquid matrix to understand the size control of polyimide nanoparticles", *Royal Society Open Science*, 11, 231995 (2024).
- 4) Y. Akamine, F. Nishino, T. Yamashita, M. Tsushida, K. Awaya, M. Machida, S.

MushrifaZahan, D. R. Dekel, J. Ohyama. "The impact of metal—support interaction on the structure and activity of carbon-supported Ni nanoparticle catalysts for alkaline hydrogen oxidation reaction, Y, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **16**, 69316–69323 (2024).