

京都大学	博士（工学）	氏名	倪佳媛（NI JIAYUAN）
論文題目	Studies on Evaluation and Interfacial Phenomena in Oxygen Electrocatalysis （酸素電極触媒における評価と界面現象に関する研究）		
（論文内容の要旨） 本論文は、酸素発生反応（OER）および酸素還元反応（ORR）に関する電気化学特性を体系的に解析し、高活性かつ高耐久な酸素電極触媒の設計指針を確立することを目的として行われた研究をまとめたものであり、序論および2部5章より構成されている。第1部ではアルカリ系電解質中におけるペロブスカイト-炭素複合触媒の反応機構解析および定量評価法の高度化、第2部では酸性電解質中で高活性・高耐久を両立するパイロクロア型酸化物触媒の合理的設計についての研究をまとめている。 序論では、再生可能エネルギーの導入拡大およびカーボンニュートラル社会の実現に向けて、酸素電極反応が依然として大きな速度論的制約となっている現状を整理している。OER および ORR は多段階の電子・プロトン移動を伴う複雑な反応であり、触媒活性の向上と耐久性の確保が両立し難いという課題があることを俯瞰的にまとめている。また、アルカリ系と酸性系では触媒に求められる安定性条件が本質的に異なることを示し、本研究が両電解質環境を横断的に扱う意義を明確に位置付けている。 第1章では、ペロブスカイト型酸化物と黒鉛化度の異なる炭素支持体との複合化がORRおよびOER特性に与える影響を体系的に検討している。構造解析および回転ディスク電極測定により反応経路および電子移動数を評価し、高比表面積アモルファス炭素が初期活性を向上させる一方で、黒鉛化炭素が優れた構造安定性を示すことを明らかにした。これにより、炭素構造が活性と耐久性の両面に影響を与えることを定量的に示している。 第2章では、微分電気化学質量分析（DEMS）を用いて OER 時に発生する CO₂を直接検出し、炭素腐食電流を定量的に分離した。総電流値の中に副反応電流が含まれることを明確に示し、従来の活性評価に対する再検討の必要性を提示している。さらに、ペロブスカイト触媒が炭素酸化を促進することを実証し、触媒-支持体界面における電子相互作用の重要性を明らかにしている。 第3章では、回転リングディスク電極（RRDE）法における酸素捕集効率の時間依存性に着目し、動的補正法を導入することでファラデー効率を高精度で算出する評価手法を確立した。この手法により、OER 由来電流と副反応電流を厳密に分離することが可能となり、触媒活性評価の信頼性を大幅に向上させた。 第4章では、B サイト組成の変化が炭素腐食挙動および OER 経路に及ぼす影響を体系的に解析している。触媒の酸化還元特性が支持体安定性を規定することを明らかにし、活性向上と耐久性確保を両立するためには触媒組成と炭素特性の協調設計が重要であることを示している。 第2部第5章では、A サイト Mg 置換型パイロクロア酸化物 Pr_{2-x}MgxM₂O₇（M = Ir, Ru）を設計・合成し、酸性条件下における OER 活性および耐久性向上機構を明らかにしている。Mg 導入により酸素空孔濃度が増加し、B サイト金属-酸素結合の電子構造が最適化されることで活性が向上するとともに、金属溶出が抑制されることを分光学的および化学分析により実証した。本成果は酸性 OER 触媒設計における有効な電子構造制御指針を提示するものである。			

京都大学	博士（工学）	氏名	倪佳媛（NI JIAYUAN）
以上、本論文は、アルカリ系および酸性系という異なる反応環境を横断的に扱い、定量評価法の高度化と電子構造制御に基づく材料設計指針を提示したものであり、酸素電極触媒研究の発展に資する重要な学術的知見を提供するものである。			