

## 研究成果報告書

研究テーマ (和文)	亜鉛空気電池のアノード 2 機能触媒としての Pt-バイメタル酸化物ナノクラスター		
研究テーマ (英文)	Pt based bimetal oxides nanoclusters as catalyst for anode of rechargeable zinc air battery		
研究期間	2018年～2021年		研究機関名 北海道大学・大学院工学研究院
研究代表者	氏名	(漢字)	
		(カタカナ)	グエン タン マイ
		(英文)	NGUYEN Thanh Mai
	所属機関・職名	材料科学部門・マテリアル設計分野・助教	
共同研究者 (1名をこえる場合は、別紙追加用紙へ)	氏名	(漢字)	
		(カタカナ)	
		(英文)	
	所属機関・職名		

概要 (600字～800字程度にまとめてください。)

再生可能エネルギーの導入促進に伴い、高効率で安全な二次電池が求められている。亜鉛空気二次電池(ZAB)は、高容量と高いエネルギー密度をもつ有効な電池系である。さらに、ZABは水性電解液を用いており、活物質に無毒で豊富で廉価な亜鉛と大気中の酸素を用いていることから、安全で環境に優しい電池である。亜鉛空気二次電池は、放電時に酸素が水酸化物イオンに正極で還元され(酸素還元反応, ORR)、充電時に酸素が発生する(酸素発生反応, OER)。ORRは多段階で反応速度が遅く、OERは過電圧が高いという課題がある。よって、ORRとOERには有効な触媒が必要不可欠である。Pt/CとIrO<sub>2</sub>はORRとOERそれぞれに対してよく知られている触媒であるが、大規模な用途には、これらの希少な貴金属成分を用いる場合にはコストのハードルが高いのも事実である。従って、触媒機能を十分に維持しつつPt含有量を減らすことが必要である。本研究では、亜鉛空気二次電池正極用Pt合金触媒を開発し、つづいて、Ptフリー酸化金属(例:酸化Fe-Co)ナノ粒子触媒の合成と利用に挑戦する。Pt系ナノ粒子は真空コスパッタリング法によりポリエチレングリコール(PEG)イオン液体中にPt単元素と合金で形成した。このとき3nm以下のナノ粒子が得られ合金ナノ粒子は固溶体構造をもっていた。固溶体の組成はターゲットに掛ける電流によって微調整ができることも見いだされた。また、同様のコスパッタリング法で混和性ギャップ内の組成を有するAg-Pt固溶体ナノ粒子の合成にも成功した。こうした固溶体の形成の確認には、原子分解能電子顕微鏡によるEDS元素マッピング及び微細構造分析を用いた。コスパッタリング法で形成したPt合金ナノ粒子はPt単体ナノ粒子と同等なORR性能を有することが判明した。そして、Ptと合金化する元素種によってそのORR性能が大きく変動されることが明らかとなった。さらに、グリーン合成法で地球に豊富にある金属元素の酸化二金属ナノ粒子(例:Fe-Co)の合成にも挑戦し、rGO(還元型酸化グラフェン)上に分散担持した。組成・担持量を最適化した触媒を使用したZABは約60サイクルの間、90%以上の放電容量を維持することに成功した。本研究の成果により、亜鉛空気二次電池のORR、OER触媒としてPt合金固溶体と汎用的な金属の二金属酸化物ナノ粒子の触媒が実用可能性を持つことを示すことができた。

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）					
雑誌	論文課題	Efficient iron-cobalt oxide bifunctional electrode catalyst in rechargeable high current density zinc-air battery			
	著者名	Wei Jian Sim, Mai Thanh Nguyen, Zixuan Huang, Soorathep Kheawhom, Chularat Wattanakit, Tetsu Yonezawa	雑誌名	Nanoscale	
	ページ	8012~8022	発行年	2022	巻号 14
雑誌	論文課題	Impact of Morphology and Transition Metal Doping of Vanadate Nanowires without Surface Modification on the Performance of Aqueous Zinc-Ion Batteries			
	著者名	Mai Thanh Nguyen, Tatsuki Muramatsu, Soorathep Kheawhom, Chularat Wattanakit, Tetsu Yonezawa	雑誌名	Bulletin of the Chemical Society of Japan	
	ページ	728~734	発行年	2022	巻号 97
雑誌	論文課題	Pt/Ag Solid Solution Alloy Nanoparticles in Miscibility Gaps Synthesized by Cosputtering onto Liquid Polymers			
	著者名	Mingbei Zhu, Mai Thanh Nguyen, Yuen-ting Rachel Chau, Lianlian Deng, Tetsu Yonezawa	雑誌名	Langmuir	
	ページ	6096~6105	発行年	2021	巻号 37
雑誌	論文課題	Synergistic Effect of the Oleic Acid and Oleylamine Mixed-Liquid Matrix on Particle Size and Stability of Sputtered Metal Nanoparticles			
	著者名	Mai Thanh Nguyen, Krittaporn Wongrujipairoj, Hiroki Tsukamoto, Soorathep Kheawhom, Shuang Mei, Vipada Aupama, Tetsu Yonezawa	雑誌名	ACS Sustainable Chemistry & Engineering	
	ページ	18167~18176	発行年	2020	巻号 8
	論文課題	Anisotropic Growth of Copper Nanorods Mediated by Cl <sup>-</sup> Ions			

雑誌	著者名	Min Jia Saw, Mai Thanh Nguyen, Yuji Kunisada, Tomoharu Tokunaga, Tetsu Yonezawa	雑誌名	ACS Omega		
	ページ	7414~7420	発行年	2022	巻号	7
雑誌	論文課題	THz wave emission from the Cu <sub>2</sub> O/Cu interface under femtosecond laser irradiation				
	著者名	Yuen-Ting Rachel Chau, Hsin-hui Huang, Mai Thanh Nguyen, Koji Hatanaka, Tetsu Yonezawa	雑誌名	Applied Physics Express		
	ページ	012006-1~5	発行年	2021	巻号	14
雑誌	論文課題	Co-sputtered CuPt/Ag alloy nanoparticles and comparative catalytic performance of mono-, bi-, and tri-metallic nanoparticles in oxygen reduction reaction				
	著者名	Mingbei Zhu, Mai Thanh Nguyen, Wei Jian Sim, Tetsu Yonezawa	雑誌名	Materials Advances (accepted for publication, DOI: <a href="https://doi.org/10.1039/D2MA00688J">https://doi.org/10.1039/D2MA00688J</a> )		
	ページ		発行年	2022	巻号	

英文抄録 (100語~200語程度にまとめてください。)

Good performance and safe rechargeable batteries are demanded. Zinc air battery (ZAB) offers high capacity and energy density. Moreover, it uses aqueous electrolyte and non-toxic, abundant, and cheap active materials (air and zinc) so it is safe and eco-friendly. This research aims to create and evaluate catalysts for rechargeable ZAB's cathode. At the cathode, oxygen (from air) is consumed to form OH<sup>-</sup> (oxygen reduction reaction, ORR) and re-generated (oxygen evolution reaction, OER) when ZAB is discharged and charged, respectively. Catalysts are indispensable for ORR and OER. Pt/C and IrO<sub>2</sub> are typical ORR and OER catalyst, respectively, but they are expensive. Thus, in this study, efficient ORR/OER catalysts were created based on Pt-alloy and Pt-free metal oxide (e.g., Fe-Co, Co-Ni oxides) nanoparticles. The results indicate that similar ORR performance of Pt-alloy to that of Pt nanoparticles was obtained. Moreover, the earth-abundance metal oxide nanoparticles such as Fe/Co oxide nanoparticles were found to be effective ORR/OER bifunctional catalysts for ZAB.

共同研究者	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
	所属機関・職名			
	氏名	(漢字)		
		(カタカナ)		
		(英文)		
所属機関・職名				
氏名	(漢字)			
	(カタカナ)			
	(英文)			
所属機関・職名				
氏名	(漢字)			
	(カタカナ)			
	(英文)			
所属機関・職名				
氏名	(漢字)			
	(カタカナ)			
	(英文)			
所属機関・職名				
氏名	(漢字)			
	(カタカナ)			
	(英文)			
所属機関・職名				