

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	再生可能エネルギーの有効利用を目的としたトルエン電解水素化反応におけるRu-Ir協奏触媒作用
Title(English)	
著者(和文)	井波雄太
Author(English)	Yuta Inami
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11467号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山中 一郎,多湖 輝興,大友 明,桑田 繁樹,本倉 健
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11467号, Conferred date:2020/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	井波 雄太		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	山中 一郎	教授	審査員	本倉 健	准教授
	審査員	多湖 輝興	教授			
		大友 明	教授			
		桑田 繁樹	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「再生可能エネルギーの有効利用を目的としたトルエン電解水素化反応における Ru-Ir 協奏触媒作用」と題し、7章よりなっている。

第1章「序論」では、各種水素貯蔵技術について概説し、本論文で研究対象としているトルエン/メチルシクロヘキサン (MCH) 系有機ハイドライド法の特徴を論じている。トルエン水素化法として提案されている電解水素化法の開発動向について述べ、本研究の意義と目的を明らかにしている。

第2章「Ketjenblack 担持貴金属カソードによるトルエン電解水素化反応」では、Ketjenblack に担持した種々の貴金属カソードを用いて 0.050 A cm^{-2} 定電流電解を実施し、MCH 生成に有効な触媒の探索研究を行い、Ru 電極触媒が特に有効であり、1 wt% の低担持量でも 71% の高い MCH 生成ファラデー効率 (FE(MCH)) を示す事を見出している。貴金属カソードによるトルエン電解水素化の反応機構を探索し、 H^+ の電解還元により金属表面に生成した吸着水素種 (H_{ad}) が金属表面に吸着したトルエンと反応する反応機構を解明している。本反応系では電極触媒の H_{ad} 生成能とトルエン水素化能が電解水素化活性を決定する因子である事を明らかにしている。

第3章「カーボンブラック担持 Ru カソードにおける炭素担体効果」では、トルエン電解水素化反応における炭素担体の役割について探求している。各種カーボンブラックに担持した Ru カソードのトルエン電解水素化活性を比較検討し、電解水素化活性が炭素担体によって大きく変化する事を見出している。反応結果を解析した結果、電解水素化活性が担体のトルエン吸着能と相関する事を見出している。電解中に炭素表面に吸着したトルエンが Ru 表面に供給され、リザーバーとして作用することで Ru 上のトルエン被覆率が高く維持され、副反応である水素発生が抑制される担体の作用機構を明らかにしている。

第4章「Ru/KB 電極触媒に対する Ir の添加効果」では、Ru カソードの課題である過電圧の改善を行っている。Ru カソードは高い FE(MCH) を示すが、トルエン電解水素化反応に対して大きな過電圧を示す。Ru に対して第二成分を添加したカソードを調製し、厳しい条件である 0.20 A cm^{-2} で定電流電解を実施し、Ru-Ir カソードが Ru カソードと同等の高い FE(MCH) を維持したまま、過電圧が大幅に減少する事を見出している。さらに、 0.40 A cm^{-2} の高電流密度においても Ru-Ir カソードは高い活性を示し、その活性は高担持量の Pt カソードを凌駕する事を明らかにしている。Ru-Ir カソードの、Pt 代替カソードとしての可能性を提言している。

第5章「Ru-Ir 電極触媒における Ru-Ir 構造とトルエン電解水素化活性」では、X 線吸収分光、X 線光電子分光、サイクリックボルタンメトリーなどにより、Ru-Ir 電極触媒のキャラクタリゼーションを行い、各 Ru-Ir 電極触媒の Ru と Ir の構造とトルエン電解水素化活性との関係について議論している。

第6章「トルエン電解水素化反応における Ru-Ir 協奏触媒作用」では、 H^+ 電解還元による H_{ad} 生成およびトルエン水素化の速度論的検討に基づき、Ru-Ir カソードによるトルエン電解水素化の反応機構を検討している。その結果、 H^+ の電解還元により Ir 上に生成した H_{ad} が、Ru 上へスピルオーバーし、Ru 上の活性水素種と Ru 上で吸着活性化されたトルエンが反応する反応機構を明らかにしている。Ru-Ir カソードは、 H_{ad} 生成触媒 (Ir) とトルエン水素化触媒触媒 (Ru) として触媒機能を分化して作用する事で高いトルエン電解水素化活性を示した事を明らかにしている。

第7章「総括」では本研究の成果をまとめ、その工学的、学術的重要性と意義を明らかにしている。これを要するに本論文は、トルエン電解水素化反応に対して高活性を示す Ru-Ir カソードを開発し、その電極触媒作用および反応機構を明らかにしたものであり、工学上および学術上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。