

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	固体酸化物燃料電池/電解セルを使用したカーボン空気二次電池システムの開発と計算化学を用いたイオン伝導体開発手法の検討
Title(English)	
著者(和文)	亀田 恵佑
Author(English)	Keisuke Kameda
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11814号, 授与年月日:2022年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:伊原 学,MANZHOS SERGEI,荒井 創,下山 裕介,花村 克悟,平山 雅章
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11814号, Conferred date:2022/3/26, 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

(博士課程)

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	亀田 恵佑	
		氏名	職名	氏名	職名
論文審査 審査員	主査	伊原 学	教授	花村 克悟	教授
	審査員	Sergei Manzhos	准教授	平山 雅章	教授
		荒井 創	教授		
		下山 裕介	教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「固体酸化物燃料電池/電解セルを使用したカーボン空気二次電池システムの開発と計算化学を用いたイオン伝導体開発手法の検討」と題し、以下の8章で構成される。

1章では、大容量蓄電技術として期待される水素蓄電システムは体積エネルギー密度と効率が低い課題があることを示し、理論的には高エネルギー密度かつ高効率なエネルギー変換が可能な炭素と二酸化炭素(CO₂)の酸化還元反応を蓄電技術に応用したカーボン空気二次電池(CASB)システムを本研究で着想したことを述べた。これまで独立に研究されてきた炭素燃料電池とCO₂電解セルに関して紹介し、それらを組み合わせた蓄電システムは未報告であった。また、蓄電池や燃料電池/電解セルで重要なイオン伝導体開発の有効な手法として結晶構造データベースを活用したスクリーニング手法の既往の研究について紹介した。スクリーニングに必要なデータを取得するための実験や密度汎関数理論計算は多くの時間を要することなどから、イオン伝導特性に強い影響を与えるドーパントを含むデータ量が不十分であるという課題があった。これらの背景から本学位論文では、CASBシステムの提案、充放電の実証、燃料極の開発、充放電プロセスの検討及び理論エネルギー密度とシステム効率の試算、計算化学を利用したイオン伝導体開発手法の検討を目的とした。

2章では、本研究で行った実験方法及び計算方法について述べた。

3章では、CASBシステムを提案し、その概念、貯蔵物質の特長、想定する充放電機構について記述した。CASBシステムの特長は充放電の反応エントロピー変化が小さいため熱利用を最小化できること、及び炭素と液化CO₂基準の体積エネルギー密度が1625 Wh L⁻¹と高いことである。CASBシステムはSOFC/SOECと液化CO₂貯蔵部から構成され、炭素はSOFC/SOEC内部に貯蔵される。よってSOFC/SOECの出力と独立に蓄電容量を増大できるため、CASBシステムは大容量蓄電に適することを述べた。充放電は電気化学反応と熱化学反応が並行して進行し、Boudouard反応: 2CO₂⇌C+CO₂による炭素の析出及び消費が本CASBシステムの実現には鍵となることを示した。

4章では、CASBシステムの充放電の実証に成功し、水素蓄電システムに匹敵する充放電効率38%(800°C, ±100 mA cm⁻²)が得られた。段階的に進行する充放電反応を解明するとともに、3章で示した充放電反応が実際に進行することを明らかにした。さらに充放電回数、電流密度、作動温度などが充放電特性に与える影響を検証した結果、高効率化には高温作動、充電時の析出炭素の制御、炭素析出時の過電圧の抑制が重要であることを明らかにした。

5章では、イオン伝導特性の異なる酸化物を有する燃料極について充放電特性を比較した。Ni/Y₂O₃安定化ZrO₂燃料極は放電時にNiが酸化し充電過電圧を増大させたが、Niの酸化を抑制できれば電子-酸化物イオン混合伝導性を有するNi/Gd-doped CeO₂燃料極より高い充放電特性が得られることを示した。また、燃料極の三相界面長さ密度を増大させることで充電時に進行するCO₂電解特性向上の可能性を見出した。

6章では、CASBシステムの理論エネルギー密度を、その他蓄電技術と比較するとともに、充放電プロセスを検討し、その充放電に基づく理論システム効率を試算した。炭素と液化CO₂の貯蔵量をSOFC/SOECの容量に対して増大させることで、CASBシステムは水素蓄電システムやその他蓄電技術より高い体積エネルギー密度を有することを明らかにした。反応エントロピー変化及びCO₂の蒸発潜熱が小さいことによりCASBシステムは水素蓄電システムより高いシステム効率が得られる可能性を理論的に明らかにした。

7章では、イオン伝導経路を高速で計算可能な結合原子価(BV)計算を用いるには、その計算精度を大幅に向上させることが課題であることを示し、その手法に繋がる機械学習による構造最適化手法を提案した。

8章では、本研究で得られた結果を総括し、本研究の結論を述べた。

以上要するに、本論文では炭素とCO₂の酸化還元反応を利用した大容量蓄電技術としてCASBシステムを提案し、その充放電の概念実証に成功するとともに高効率化に向けた燃料極を開発し、CASBシステムが高い理論体積エネルギー密度と理論効率を有することを明らかにした。さらに機械学習を利用した手法によりBV計算精度の向上に成功した。よってCASBシステムは再生可能エネルギーの大量導入に必要な蓄電技術の新たな選択肢として期待されるとともに、イオン伝導体開発の高速スクリーニングの実現に向けた手法提案を行った。

従って、本論文はカーボンニュートラル社会実現に向けた大容量蓄電システム開発といったエネルギー分野において、その工学的な学術的価値が高い。よって博士(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。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。