

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	水素合成を目的とした尿素水SPE電解におけるNiアノードの開発及び作用機構の解明
Title(English)	
著者(和文)	岡野歩
Author(English)	Ayumu Okano
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12762号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山中 一郎,山口 猛央,伊原 学,荒井 創,平山 雅章
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12762号, Conferred date:2024/3/26, 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	岡野 歩	
		氏名	職名		氏名	職名
論文審査 審査員	主査	山中一郎	教授	審査員	平山 雅章	教授
	審査員	山口 猛央	教授			
		伊原 学	教授			
		荒井 創	教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「水素合成を目的とした尿素水 SPE 電解における Ni アノードの開発および作用機構の解明」と題し、7章よりなっている。

第1章「序論」では、水電解技術や水以外の反応基質を用いた水素製造法における利点と課題を述べている。また、尿素水の電解改質反応における技術的な課題を述べ、また本研究に至るまでに行った修士課程における研究結果を述べている。それらをもとに本研究の指針と目的を明示している。

第2章「アニオン交換膜を用いた尿素水電解改質反応系の開発」では、SPE 電解法を用いた尿素水の電解改質反応における各種金属アノードの活性評価を行っている。電気化学析出法で作製した Ni/Ti-mesh アノードが尿素水電解改質反応に高い活性を示し、2.0 V 定電圧電解においてカソード側で H<sub>2</sub> が平均生成速度 2.5 mmol h<sup>-1</sup> cm<sup>-2</sup>、選択率 100 % で生成していることを確認している。さらに 2 室型のセルを用いることで純粋な水素を高効率で取り出せることを実証し、水素製造法としての SPE 電解法を用いた尿素水電解反応の可能性を明らかにしている。

第3章「尿素水電解反応における Ni 活性点の作用機構の解明」では、Ni/Ti-mesh アノードの活性点構造および作用機構を明らかにするために各種分光法を用いた特性評価を実施している。その結果、反応前の Ni/Ti-mesh には 2 価の Ni(OH)<sub>2</sub> が主に存在しており、電解反応中には 2 価から 3 価の NiOOH 種に電気化学的に酸化され、さらに反応後には 2 価の Ni(OH)<sub>2</sub> に戻ることを明らかにしている。これらの観測結果から Ni/Ti-mesh アノード上での尿素水電解反応は NiOOH と Ni(OH)<sub>2</sub> の酸化還元対による電気化学反応と化学反応が協奏した EC 機構で進行することを明らかにしている。

第4章「尿素水の電解活性化における反応機構の解明」では、Ni/Ti-mesh アノードを用いた尿素水電解反応における反応機構を明らかにするため、各種分析法を用いた生成物の収支計算を行っている。N<sub>2</sub> や CO<sub>2</sub> 以外にも NCO<sup>-</sup>、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の生成量の定量を行い、これらの結果から Ni/Ti-mesh アノードを用いた尿素水電解反応において、C-N 結合の開裂による CO<sub>2</sub>、NCO の生成と \*NH<sub>2</sub> 吸着種の逐次的な酸化による N<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub><sup>-</sup> および NO<sub>3</sub><sup>-</sup> の生成が連続して進行する反応機構で進行していることを明らかにしている。

第5章「中性条件下における尿素水電解反応系の開発」では、Ni/Ti-mesh アノードによる中性条件下における尿素水電解反応の高効率化を目指し、アノード特性の改良を行っている。その結果、反応速度を決める要因がアノード中の OH<sup>-</sup> 伝搬性および水との親和性であることを明らかにし、KOH 浸漬混練アノードが耐久性には課題があるものの、中性条件尿素水電解反応に対して高い活性を示すことを見出している。

第6章「VGCF 添加混練アノードによる中性尿素水電解反応」では、KOH 浸漬混練アノードの課題である耐久性を改善するために電極構造の改良を行った結果、VGCF 添加混練アノードが高い耐久性を持つアノードであることを見出している。VGCF の機能として、その繊維構造によりアノード内部の水の分極が誘発されて OH<sup>-</sup> 伝搬性が発現するモデルを提案するとともに、中性条件下での SPE 電解に対して高活性を示すことを実証している。

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、SPE 電解法を用いた尿素水の電解改質反応に対して高活性を示す Ni/Ti-mesh アノードを開発し、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。