

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	プラズマと触媒の複合反応を利用したCO2水素化反応に関する基礎研究
Title(English)	
著者(和文)	李鳴
Author(English)	Ming Li
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12894号, 授与年月日:2024年9月20日, 学位の種別:課程博士, 審査員:野崎 智洋,末包 哲也,齊藤 卓志,笹部 崇,長澤 剛
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12894号, Conferred date:2024/9/20, 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	李 鳴	
論文審査 審査員		氏名	職名	氏名	職名
	主査	野崎 智洋	教授	長澤 剛	准教授
	審査員	末包 哲也	教授		
		齊藤 卓志	教授		
笹部 崇		准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「プラズマと触媒の複合反応を利用した CO₂ 水素化反応に関する基礎研究」と題し全 4 章から構成されている。

第 1 章「序論」では、CO₂ 排出量削減を目的として、CO₂ と H₂ から CO や CH₄ などを合成する CO₂ 水素化反応の必要性を説明し、非平衡プラズマを用いて化学的に安定な CO₂ に内部エネルギーを与えて振動励起することで、熱触媒反応では対応できない低温で CO₂ 水素化反応を促進するプラズマ触媒反応の優位性と課題を論じている。その上で、プラズマと触媒の相互作用の効果を高めるには、プラズマとの複合反応に適した触媒の開発および CO₂ 活性化に適したプラズマ源の開発が必要であることを述べ、プラズマ触媒反応の機構解明を通じてその最適化指針を与えることが本研究の目的であると述べている。

第 2 章「誘電体バリア放電による Ni 合金触媒のスクリーニング」では、電気特性が既知のプラズマ源として誘電体バリア放電 (Dielectric Barrier Discharge : DBD) を用い、これを種々の Ni 合金触媒 (NiCu, NiZn, NiGa, Ni₃Ga, NiIn/Al₂O₃) に作用させて高活性触媒のスクリーニングを実施している。DBD の複合反応において高い活性を示したのは NiZn 触媒のみで、触媒温度 350°C 一定の条件で CO₂ 転換率が熱反応より約 35% 高くなることを検証している。in situ 赤外吸収分光分析により、中間体であるギ酸塩 (HCOO) の生成が DBD によって促進されるとともに、主生成物である CO の収率が増大することに相関を見出している。一方、CO₂ の吸着サイトを特定するには至っておらず、触媒スクリーニングで得られた知見を触媒設計に展開するうえで解明すべき優先的研究課題であることを指摘している。

第 3 章「グライディングアーク放電によるプラズマ触媒反応の促進効果」では、モデル触媒として Ni/Al₂O₃ を用い、DBD よりも CO₂ 振動励起に適しているグライディングアーク放電 (Gliding Arc Discharge : GAD) を作用させてプラズマによる反応促進効果を検証し、DBD に対する GAD の優位性を示すことを目的に研究を実施している。電圧電流波形の解析から、GAD は高電圧回路の出力インピーダンスによって放電電流が制限された過渡的なアーク状放電プラズマであり、放電電流が数 100 mA に相当するスパーク放電モードと、数 10 mA 程度にとどまるグロー放電モードに大別できることを明らかにしている。スパーク放電モードに起因して、電子衝突による CO₂ 分解反応が触媒反応と同レベルの寄与で生じる点で DBD との差異を論じている。また、気相で生成された CO は触媒反応に関与しておらず、主生成物の一つである CH₄ は触媒が介在する場合のみ生成され、かつ GAD によって振動励起 CO₂ を供給することで熱触媒反応より高い収率を示すことを明らかにする一方、GAD による反応促進機構は DBD と本質的に同じであると結論付けている。これにより、第 2 章で得られた Ni 合金触媒に GAD を作用させた場合、DBD と同じ順序で触媒活性が決定されることを指摘している。加えて、GAD では大きな放電電流に起因して触媒にダメージを与えることが欠点であることを指摘し、GAD を間接的に触媒に作用させる反応器構成が必須であることを提案するとともに、反応器設計における DBD との差異を論じている。

第 4 章「結論」では、本論文の結論を総括するとともに、今後の展望を述べている。

以上を要するに、本論文は CO₂ の有用物質への転換を目的としてプラズマ触媒反応に関する研究を行い、DBD による高活性触媒のスクリーニングを行う基本技術を確認するとともに、プラズマによる触媒反応促進機構を明らかにしている。DBD よりも大きな放電電流を実現する GAD は高い反応促進効果を示すものの、振動励起 CO₂ による表面反応機構は本質的に DBD と同じであることを明らかにするとともに、GAD による触媒劣化など解決すべき課題を指摘し、プラズマ触媒反応の最適化指針を示したものであり、工業上・工学上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) 論文として十分な価値を有すると認められる。

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。