T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	High Temperature Carbon Dioxide Reduction in Tubular Solid Oxide Electrolysis Cells for a Carbon Recycling Ironmaking System
著者(和文)	DipuArnoldus Lambertus
Author(English)	Arnolduslambertus Dipu
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9474号, 授与年月日:2014年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:加藤　之貴,小澤　正基,矢野　豊彦,竹下　健二,塚原　剛彦
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9474号, Conferred date:2014/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

（博士課程）

Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	Nuclear Engineering 専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of (Engineering)
学生氏名： Student's Name	Arnoldus Lambertus Dipu	指導教員（主）： Academic Advisor(main)	Yukitaka Kato
		指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	Toru Obara

要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary（approx.2000 Japanese Characters ）

本論文は"High Temperature Carbon Dioxide Reduction in Tubular Solid Oxide Electrolysis Cells for a Carbon Recycling Ironmaking System"(炭素循環製鉄のための管型固体酸化物電気分解セルによる高温二酸化炭素還元) と題し、6 章より構成されている。

第 1 章「Introduction to Active Carbon Recycling Energy System」では、二酸化炭素(CO_2)排出の削減手法として能動的な炭素循環エネルギーシステム(Active Carbon Recycling Energy System, ACRES)が有用であることを述べている。ACRES 駆動のための一次エネルギー源として高温出力と、非 CO_2 排出、量的な安定性から高温ガス炉(High Temperature Gas-cooled Reactor, HTGR)が最も有効であることを示している。産業分野で 44%の CO_2 を排出する製鉄プロセスに対して ACRES を利用した炭素循環製鉄手法を提案している。ACRES の成立には CO_2 の還元が重要技術であり、この実現に固体酸化物電気分解セル(Solid Oxide Electrolysis Cell, SOEC)技術が有効であることを示している。以上より HTGR 駆動の SOEC 技術を用いた炭素循環製鉄の重要性を述べ、本研究の目的と意義を示している。

第 2 章「Carbon Dioxide Electrolysis in SOEC」では、SOEC を用いた CO_2 電気分解による一酸化炭素(CO)、酸素(O_2)生成の原理を述べている。電気分解は高温になるほど Gibbs 自由エネルギーが低減し、電力消費が削減でき、より効率的に進行することを示している。従来の SOEC 研究は小円盤型セルによる基礎的検討が主であり、産業利用向けのセルの大面積化には本研究の研究対象である管型 SOEC の開発が必要であると述べている。

第 3 章「Basic Studies on Carbon Dioxide Electrolysis in YSZ-based Electrolyte」では管型 SOEC を用いた CO_2 電気分解実証試験を検討している。 管型 YSZ(Yttria Stabilized Zirconia)(外直径 8 mm、内直径 5 mm×長さ 300 mm)の外表面をカソード触媒層、内面をアノード触媒層とし、アノード|電解質|カソードの構成が Pt-LSM|YSZ|Pt-LSM、LSM|YSZ|LSM、Pt|YSZ|LSM (Pt:白金、LSM：$La_{0.8}Sr_{0.2}MnO_3$)である 3 種の SOEC を検討している。電解温度 800～900℃の電気分解試験で、SOEC による CO_2 電気分解の進行を実証している。Pt-LSM 系セルが最も反応活性が高いことを示している。

第 4 章「Improvement of Carbon Dioxide Electrolysis Performance Using Ni-LSM|YSZ|LSM-YSZ Cell and Ni-YSZ|YSZ|LSM-YSZ Cell」では、高価な Pt を使用しないセル構成を検討し Ni-LSM|YSZ|LSM-YSZ 及び Ni-YSZ|YSZ|LSM-YSZ の構成を持つ SOEC を作製し反応性を実験的に検討している。電解温度の向上に伴い電圧値一定の際に電流密度が向上し、電気分解反応性が向上することを示している。第 3、4 章のセルの中で Ni-LSM 系セルが最も優れた性能を示し、また CO : O_2 生成比がほぼ 1 : 0.5 となり、Faraday 則に応じて化学量論的に電気分解が進むことを明らかにしている。第 5 章のプロセス評価に必要な条件下においての CO 生成速度を実験的に明らかにし、また、250 時間の連続試験でも反応活性、結晶構造に大きな変化が見られず安定していることを実証している。

第 5 章「ACRES-HTGR within Ironmaking Process」では、高温ガス炉駆動 ACRES を用いた製鉄プロセスを提案し、実験結果をもとにプロセスの規模を評価している。HTGR の高温熱を用いて 800℃での高温電気分解を想定し、第 4 章で開発した Ni-YSZ|YSZ|LSM-YSZ の実験結果を用いてエネルギー収支を算定している。JAERI/JAEA が提案した HTGR システム（GTHTR300、熱出力 600MWt）を用い、日本の在来主力製鉄方法である高炉（3.4 ton s^{-1}）を対象にした炭素循環製鉄システムを検討し、高炉 1 基あたり HTGR は 2.9 基、SOEC 所要表面積は 66 km^2 と算定している。今後、SOEC 反応活性の向上による表面積の削減が主要な研究対象であると述べている。本検討より HTGR を駆動源とした SOEC の利用による炭素循環製鉄の基礎的な成立性を示し、ACRES 手法が日本の炭素資源供給・エネルギー供給安全保障と低炭素社会に貢献できると結論している。

第 6 章「Conclusions」では、本論文を総括し結論を述べている。

これを要するに、本論文は HTGR 駆動の炭素循環製鉄の成立に必要な SOEC による CO_2 電気分解の技術的な可能性を示したものであり、工学上及び工業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価値あるものと認められる。

備考 ： 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

（博士課程）
Doctoral Program

論 文 要 旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	Nuclear Engineering 専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 (Engineering) Doctor of
学生氏名： Student's Name	Arnoldus Lambertus Dipu	指導教員（主）： Academic Advisor(main)	Yukitaka Kato
		指導教員（副）： Academic Advisor(sub)	Toru Obara

要旨（英文 300 語程度）
Thesis Summary（approx.300 English Words ）

The feasibility study of high temperature carbon dioxide (CO_2) reduction using tubular yttria stabilized zirconia (YSZ)-based electrolyte was conducted for carbon monoxide (CO) regeneration in active carbon recycling energy system (ACRES) driven by high temperature gas reactor. In this new energy system, carbon in the form of CO is reused cyclically, consuming non-CO_2-emitting primary energy sources, thus reducing emissions of CO_2 to the atmosphere. One promising aspect of CO regeneration using ACRES is that CO_2 reduction using solid oxide electrolysis cells (SOECs) occurs at high temperatures. This research aims to study the feasibility of high temperature electrolysis of CO_2 using tubular SOECs.

Three CO_2 electrolysis processes were demonstrated using different electrode materials on the YSZ-based electrolyte. Cell-1, with a structure of Pt- $La_{0.8}Sr_{0.2}MnO_3$ (LSM)|YSZ|Pt-LSM for the cathode|electrolyte|anode, had higher current density levels than those of Cell-2, with a LSM|YSZ|LSM structure, and Cell-3, with a Pt|YSZ|LSM structure due to special structure of Pt-LSM. Some improvements to SOEC test reactor were also carried out to increase current efficiency of Ni-LSM|YSZ|LSM-YSZ cell and Ni-YSZ|YSZ|LSM-YSZ cell. It was found that current densities achieved in the experiment with Ni-YSZ|YSZ|LSM-YSZ cell at 800 °C were higher in comparison with current densities achieved in the experiment with Ni-LSM|YSZ|LSM-YSZ cell due to special structure of Ni-YSZ and LSM-YSZ through ball milling. CO and O_2 production rates of 0.78 and 0.38 μmol/(min cm^2) respectively were achieved at an operating temperature of 900 °C and a current density of 2.97 mA/cm^2.

Evaluation of ACRES Energy balances for ironmaking process showed that the required surface area of the SOECs was estimated to be 65.6 km^2/BF unit for a conventional blast furnace. It is expected that the combined system may contribute to carbon supply security and a low-carbon society.

備考 ： 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).