

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	Development of Anion Exchange Membranes with Convertible Polymer Structure for Solid Alkaline Water Electrolysis
Title(English)	Development of Anion Exchange Membranes with Convertible Polymer Structure for Solid Alkaline Water Electrolysis
著者(和文)	GRAHAH.P.R
Author(English)	Hafis Pratama Rendra Graha
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11617号, 授与年月日:2020年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山口 猛央,富田 育義,穴戸 厚,稲木 信介,田巻 孝敬
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11617号, Conferred date:2020/9/25, 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

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース： Department of, Graduate major in	応用化学 応用化学	系 コース	申請学位 (専攻分野)： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(Engineering)
学生氏名： Student's Name	Hafis Pratama Rendra Graha		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	山口 猛央	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)	田巻 孝敬	

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は、「Development of Anion Exchange Membranes with Convertible Polymer Structure for Solid Alkaline Water Electrolysis」と題し、高性能・高耐久な固体アルカリ水電解の開発を目指し、化学耐久性に優れたアニオン交換膜を設計開発し、それを利用した固体アルカリ水電解の開発基盤を構築する内容であり、英文で書かれ、全 6 章より構成されている。

第 1 章「Introduction (緒論)」では、水電解およびアニオン交換膜の最近の開発について述べている。再生可能エネルギーを大規模に利用するために必要な水電解技術として、アルカリ環境で電解質膜を用いる固体アルカリ水電解が、水溶液を用いるアルカリ水電解や酸性環境となる固体高分子形水電解よりも性能的にもコスト的にも優れていることを示している。固体アルカリ水電解を実現するためには、耐久性のあるアニオン交換膜の開発が必要不可欠であるが、ポリマー主鎖にヘテロ元素またはエーテル結合を持たないポリフェニレン系骨格を有するアニオン交換膜が、化学耐久性に優れていること、ポリフェニレン系骨格を有するアニオン交換膜を固体アルカリ水電解に応用した例は殆ど報告されていないことを述べている。

第 2 章「Development of a novel durable aromatic anion exchange membrane using a thermally convertible precursor (熱脱離基を有する新規な高耐久芳香族アニオン交換膜の開発)」では、熱脱離基を用いた新たなポリフェニレン系アニオン交換ポリマーの分子設計法を提案している。設計指針に沿って開発した、poly-(2,6-anthracene-*alt*-1,4-phenylene)骨格を持つアニオン交換ポリマー (TP-V1) は、非常に高いイオン交換基容量を持つにもかかわらず、膨潤が抑えられ高いイオン伝導性を示すこと、ヘテロ元素やエーテル基を主鎖に含まないため、高いアルカリ耐久性およびラジカル耐久性を有する事を明らかにしている。

第 3 章「Effect of backbone structure on the polyelectrolyte property of thermally convertible anion exchange membranes (熱可変型アニオン交換膜の主鎖構造が電解質膜特性に与える影響)」では、熱脱離基構造を持つ一連のアニオン交換膜の合成とその電解質膜としての性能を考察している。Poly-(2,6-anthracene-*alt*-4,4'-biphenylene)骨格を持ち、ユニット中に 2 つのアニオン交換基を導入した膜 (TP-V2)、4 つのアニオン交換基を導入した膜 (TP-V3)をはじめ、ポリマー骨格中の熱脱離性アントラセン誘導体部位と、パラ位またはメタ位で連結する種々のフェニレン構造を導入した 9 つの熱可変型ポリマー (TP-VX: X=1-9)を作成している。これらのアニオン交換膜の中でも、TP-V1、TP-V2、および TP-V3 は高分子量体となり、膜および膜電極接合体 (MEA) に応用するのに適したポリマーであることを示している。TP-V1、TP-V2 および TP-V3 は、80°C の 8 M NaOH 水溶液中でも高いアルカリ耐性を示し、TP-V1 と TP-V2 は高いラジカル耐性を示す事を明らかにしている。

第 4 章「Fabrication and evaluation of solid alkaline water electrolysis cell by using thermally convertible ether-free aromatic anion exchange membrane (熱脱離基を有しエーテル基を含まない芳香族アニオン交換膜を用いた固体アルカリ水電解セルの開発及び評価)」では、TP-V1 を用いて膜電極複合体 (MEA) を開発し、熱脱離基を有するポリマーを用いた固体アルカリ水電解用 MEA の作製手法を提案している。作製した MEA は、80°C において 1 M KOH 水溶液をアノードに流すことで高い固体アルカリ水電解性能を示すことを明らかにしている。得られた結果は、今までに報告されている性能の中でも最も高い性能の一つであり、電流密度 0.4~2.0 A cm² の領域で、ほぼ 100% の高いファラデー効率と約 80% の高いエネルギー変換効率を示す。さらに、80°C、1 M KOH 水溶液の供給において、120 時間の非常に高い安定性を示すことを実証している。

第 5 章「Evaluation of membrane electrode assembly performance and durability under constant and dynamic water electrolysis operation by using thermally convertible ether-free aromatic anion exchange membrane (熱可変型アニオン交

換膜を用いた、一定及び変動水電解運転条件下における膜電極複合体の性能及び耐久性評価」では、TP-V2 アニオン交換膜を用いた MEA の性能と耐久性を考察している。 TP-V2 を利用した MEA による固体アルカリ水電解でも、TP-V1 と同様の高い性能と高い耐久性を示すことを実証している。さらに、変動電源を念頭に置いた 1.5~2.0 V の高速サイクル試験において、TP-V1 を用いた MEA では激しく劣化するのに対し、TP-V2 を用いた MEA では 10,000 サイクル後もほぼ電解性能は変わらず高い耐久性を示すことを明らかにしている。TP-V2 は TP-V1 よりも機械的強度が高いためであり、膜の機械的強度が重要であることも明らかにしている。

第 6 章「Conclusions and future directions (結論と今後の方針)」では、得られた結果を総括し、今後の展望を述べている。

以上要するに、本論文では、高性能と高耐久性を有するアニオン交換膜およびそれを用いた固体アルカリ水電解の設計指針の提案および実証に成功しており、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)の学位論文として十分な価値が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).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(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。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)
Doctoral Program

論文要旨

THESIS SUMMARY

系・コース : Department of Graduate major in	応用化学 応用化学	系 コース	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	(Engineering)
学生氏名 : Student's Name	Hafis Pratama Rendra Graha		指導教員 (主) : Academic Supervisor(main)	山口 猛央	
			指導教員 (副) : Academic Supervisor(sub)	田巻 孝敬	

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

This thesis entitled, [Development of Anion Exchange Membranes with Convertible Polymer Structure for Solid Alkaline Water Electrolysis], aims to develop durable anion exchange membranes (AEMs) and utilize them for making solid alkaline water electrolysis (SAWE) cell with high durability in constant and dynamic electrolysis operation. The key findings of this research are described within 6 chapters in English.

In chapter 1, [Introduction], the research background and recent development of AEMs for water electrolysis application has been reviewed.

In chapter 2, [Development of a novel durable aromatic anion exchange membrane using a thermally convertible precursor], a prototype of AEM using a novel design concept involving a thermal leaving group (TLG) has been demonstrated. The developed AEM, poly-(2,6-anthracene-*alt*1,4-phenylene), which is called TP-V1 in this thesis shows high alkaline and oxidative durability owing to a heteroatom-free backbone and high ion conductivity with minimum swelling, despite having a very high IEC.

In chapter 3, [Effect of backbone structure on the polyelectrolyte property of thermally convertible anion exchange membranes], synthesis and characterization of a series of AEMs with the convertible structure are presented. In addition to TP-V1, Poly-(2,6-anthracene-*alt*4,4'-biphenylene with 2 ion exchange group called TP-V2 shows great potential for SAWE application.

In chapter 4, [Fabrication and evaluation of solid alkaline water electrolysis cell by using thermally convertible ether-free aromatic anion exchange membrane], the usability of our thermally convertible, ether-free aromatic AEM for MEAs of SAWE was showed using TP-V1 AEM system.

In chapter 5, [Evaluation of membrane electrode assembly performance and durability under constant and dynamic water electrolysis operation by using thermally convertible ether-free aromatic anion exchange membrane], the performance and durability of TP-V2 based MEA was demonstrated, highlighted on the dynamic operation.

The last chapter of this thesis, chapter 6, [Conclusions and future directions], contains general conclusions and future direction of this study.

In summary, this study proposes a new approach for designing durable anion exchange membranes and successfully demonstrated its durability for solid alkaline water electrolysis applications. The result of this thesis significantly contributes to the development of high performance and durable solid alkaline water electrolysis technology.

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).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(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。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).