

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	固体高分子電解質を用いたエタノール水溶液の純水素への電極触媒によるリフォーミングにおけるPt, Ru, Snの三元相乗効果
Title(English)	The Three-way Synergy of Pt, Ru, and Sn in the Electrocatalytic Reforming of Aqueous Ethanol Solutions to Pure Hydrogen Using Solid Polymer Electrolyte Electrolysis
著者(和文)	リダサン ジュン ジェフリー バサ
Author(English)	Jun Jeffri Basa Lidasan
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11800号, 授与年月日:2022年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山中 一郎,荒井 創,伊原 学,多湖 輝興,平山 雅章
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11800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)	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	(工学)
学生氏名： Student's Name	Lidasan Jun Jeffri Basa		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	山中 一郎	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)		

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

本論文は、「固体高分子電解質を用いたエタノール水溶液の純水素への電極触媒によるリフォーミングにおける Pt, Ru, Sn の 3 元相乗効果」と題し、6 章から構成されています。

第 1 章「エタノール水溶液の電極触媒によるリフォーミングの紹介」では、気候変動の緩和のために、再生可能な水素製造の必要性が議論された。また、カーボンニュートラルなプロセスやカーボンネガティブ可能なプロセスのために、バイオマス由来の資源を有利的に利用することが提案された。バイオマス由来バイオエタノールの水素への電解改質には、固体高分子電解質 (SPE) 電解セルが適しており、再生可能な水素製造方法として、バイオマス由来バイオエタノールの利用には魅力的な方法であることが示された。しかし、バイオエタノールから水素を製造するためには、電極の開発が必要です。

第 2 章「ケッチェンブラック®担持貴金属アノードを用いた EtOH (aq) の SPE 電解」では、EtOH (aq) 電解用アノードの検討実験条件を確立し、EtOH (aq) 電気酸化活性および触媒の EtOH 利用効率について検討した。ケッチェンブラック担持貴金属 (M/KB, M = Pt, Ir, Ru, Pd, Rh) を 10wt%担持した触媒を検討した。Ru は 10 mA cm^{-1} の電流密度で最も低い過電圧を維持することができることが判明した。

第 3 章「Pt-Ru/KB アノードにおける Pt と Ru の相乗効果的なエタノール (aq) 電解酸化」では、Pt-Ru/KB アノード上での EtOH 電気酸化により、触媒活性が相乗的に向上することが示された。Pt-Ru/KB アノード上での電流密度の向上は、AcOH への酸化速度の向上を伴っていた。この相乗効果をさらに調べるために、CV 試験も実施した。

第 4 章「Pt-Ru/KB アノードの構造とエタノール (aq) 電解のメカニズム」では、第 3 章で得られた Pt-Ru/KB 電極触媒の構造を明らかにするために、さまざまなキャラクターリゼーション手法を実施した。また、EtOH (aq) 電解酸化の反応メカニズムをさらに解明するために、in-situ XANES 研究を実施した。3 章の特性研究、in-situ 研究、CV 研究から、Pt と Ru の相乗効果によるメカニズムが提案された。

第 5 章「EtOH (aq) 電解酸化のための Pt-Ru-Sn/KB アノードにおける Pt, Ru, Sn の三方向相乗効果」では、Pt-Ru-Sn/KB アノードを用いた EtOH (aq) の電解酸化において Pt, Ru, Sn の三方向相乗効果が観測された。電流密度は Pt-Ru/KB のほぼ 2 倍であった。CO₂ の生成は低いセル電圧 (0.4~0.6V) で検出された。3 つの金属間の配位は低いが、金属と酸素の配位が高く、そこから酸化物ネットワークが提案された。この相乗効果の反応メカニズムとして、提案された酸化物ネットワーク構造を介して 3 つの金属が相互作用することを提案した。

この研究は、第 6 章「まとめと結論」で要約され、結論が述べられている。Pt-Ru-Sn/KB 触媒は、EtOH (aq) の SPE 電解による電極触媒改質により水素を製造する際に、最も高い利用率を示した。セル電圧の 0.6 V で、 $1.43 \text{ mol H}_2 \cdot \text{mol EtOH}^{-1}$ のエタノール消費量、 $16.1 \text{ kWh} \cdot \text{kg H}_2$ のエネルギー消費量での水素製造が達成された。このエタノール利用効率の測定方法は、第 1 章で述べたように、バイオエタノールのようなバイオマス由来の資源から水素を調達することの実行可能性を判断するための情報を提供するために不可欠である。

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	(工学)
学生氏名： Student's Name	Lidasan Jun Jeffri Basa		指導教員 (主)： Academic Supervisor(main)	山中 一郎	
			指導教員 (副)： Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words)

This paper, entitled “The Three-way Synergy of Pt, Ru, and Sn in the Electrocatalytic Reforming of Aqueous Ethanol Solutions to Pure Hydrogen Using Solid Polymer Electrolyte Electrolysis”, consists of 6 chapters.

In Chapter 1, “Introduction to Electrocatalytic Reforming of Aqueous Ethanol Solutions”, the necessity for renewable production of hydrogen for the mitigation of climate change was discussed. The advantageous use of biomass-derived sources for carbon-neutral and potentially carbon-negative processes were proposed. The advantages of using a solid-polymer-electrolyte (SPE) electrolysis cell for the electrocatalytic reforming of biomass-derived bioethanol to hydrogen is a promising renewable method of hydrogen production which make it an attractive method to utilize biomass-source bioethanol. Literature review show that anode development is needed for the viability of electrocatalytic reforming of EtOH.

In Chapter 2, “SPE Electrolysis of EtOH (aq) over Ketjenblack®-supported precious metal anodes”, the experimental conditions for the evaluation of anodes for EtOH (aq) electrolysis were established to determine the EtOH (aq) electro-oxidation activity and EtOH utilization efficiency of catalysts. Ketjenblack-supported precious metals (M/KB, M = Pt, Ir, Ru, Pd, Rh) at 10 wt% loading were investigated. Ru was found to be able to maintain the lowest overvoltage at a current density of 10 mA cm⁻¹.

In Chapter 3, “Synergy of Pt and Ru in Pt–Ru/KB anodes ethanol (aq) electro-oxidation”, EtOH electro-oxidation over Pt–Ru/KB anode results in synergistic enhancement of catalytic activity. Enhanced current density over Pt–Ru/KB anode was accompanied by an enhanced rate of oxidation to AcOH. CV studies were also conducted to further investigate the synergy.

In Chapter 4, “Structure of Pt–Ru/KB anodes and mechanism of ethanol (aq) electrolysis”, various characterization techniques were performed to reveal the structure of the Pt–Ru/KB electrocatalyst from Chapter 3. In-situ XANES studies were also performed to further elucidate the reaction mechanism of EtOH (aq) electro-oxidation. A synergistic mechanism between Pt and Ru was proposed based on the characterization studies, in-situ studies, and CV studies from chapter 3.

In Chapter 5, “Three-way synergy of Pt, Ru, and Sn in Pt–Ru–Sn/KB anodes for EtOH (aq) electro-oxidation”, the three-way synergy between Pt, Ru, and Sn was observed in the electro-oxidation of EtOH (aq) over Pt–Ru–Sn/KB anodes. Current densities were almost two times higher than that of Pt–Ru/KB. CO₂ formation was detected at lower cell voltages (0.4-0.6 V). Characterization studies reveal low coordination between the three metals but high metal-oxygen coordination from which an oxide network is proposed. A reaction mechanism for this synergy is proposed wherein the three metals interact through the proposed oxide network structure.

This study was summarized and concluded in Chapter 6, “Summary and Conclusions”. The Pt–Ru–Sn/KB catalysts showed the highest utilization of EtOH to produce hydrogen via electrocatalytic reforming by SPE electrolysis of aqueous EtOH. With an applied terminal voltage of 0.6 V, hydrogen production with an ethanol consumption and energy consumption of 1.43 mol_{H₂} · mol_{EtOH}⁻¹ and 16.1 kWh · kg_{H₂}, respectively was achieved. This method of determining the ethanol utilization efficiency is essential to provide information to determine the viability of sourcing hydrogen from biomass-derived sources such as bioethanol as discussed in chapter.

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).