

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)	LIDASANJun Jeffri Basa
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)	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	Lidasan Jun Jeffri Basa		
論文審査 審査員	主査 審査員	氏 名	職 名	審査員	氏 名	職 名
		山中 一郎	教授		平山 雅章	教授
		荒井 創	教授			
		伊原 学	教授			
		多湖 輝興	教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「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 (固体高分子電解質膜電解法を用いたエタノール水溶液の電解触媒改質反応による純水素合成における Pt, Ru, Sn 間の 3 元協奏効果)」と題し、6 章から構成されている。

Chapter 1 「Introduction to electrocatalytic reforming of aqueous ethanol solutions (エタノール水溶液の電解触媒改質反応の紹介)」では、地球環境の変動による気温上昇に関して紹介し、これを抑制するためのカーボンニュートラルあるいはカーボンネガティブなシステムの必要性を述べている。この方策の一つとして、バイオマス由来のエタノール水溶液と再生可能エネルギー由来の電力を用いた電解触媒改質反応による水素製造の重要性を述べ、これを実現するために固体高分子電解質膜 (SPE) 電解を応用することの長所と解決すべき技術的問題点を整理し、研究開発しなければならない課題を提示するとともに、本研究の目的と意義を述べている。

Chapter 2 「SPE electrolysis of EtOH (aq) over Ketjenblack®-supported precious metal anode (ケッチェンブラック担持貴金属アノードを用いたエタノール水溶液の SPE 電解)」では、エタノール水溶液の電解触媒改質反応に活性なアノード触媒を開発するために、ケッチェンブラック (KB) に Pt、Ir、Ru、Pd そして Rh を担持した触媒を合成して評価している。これらの触媒の中で Ru/KB 触媒を用いると電解触媒改質反応の過電圧が低く有効であり、エタノール酸化生成物はアセトアルデヒドと酢酸が生成し、還元生成物の水素は選択率が 100%であることを述べている。

Chapter 3 「Synergy of Pt and Ru in Pt-Ru/KB anodes on ethanol (aq) electrooxidation (エタノール水溶液の Pt-Ru/KB アノード上での電解酸化における Pt と Ru の協奏効果)」では、Pt-Ru/KB アノード上でのエタノール水溶液の低電位領域での電解酸化反応において、Ru と Pt との間で協奏的触媒作用が発現することを見出し、その詳細を述べている。エタノール酸化の生成物はアセトアルデヒドと酢酸であることは変わらないが、反応速度が促進され水素が選択的に生成することを述べている。この Ru と Pt の協奏効果についてサイクリックボルタムメトリーにより詳細に検討し、Ru のエタノール活性化が重要な因子であることを述べている。

Chapter 4 「Structure of Pt-Ru/KB anodes and mechanism of ethanol (aq) electrolysis (Pt-Ru/KB アノードの構造とエタノール水溶液の電解反応機構)」では、Pt-Ru/KB 電極触媒について XRD、TEM-EDS、ICP-OES、XAFS、XPS 解析を行い、触媒構造を明らかにしている。エタノール水溶液の電解酸化反応について in-situ XANES 解析を行い、反応の詳細を述べている。これら実験事実と第 3 章の結果を合わせて Ru 上でのエタノールの活性化を発端とする Pt との詳細な協奏触媒作用のモデルについて述べている。

Chapter 5 「Three-way synergy of Pt, Ru, and Sn in Pt-Ru-Sn/KB anodes for ethanol (aq) electro-oxidation (Pt-Ru-Sn/KB アノード上でのエタノール水溶液の電解酸化反応における Pt、Ru、Sn 間の 3 元協奏効果)」では、Pt-Ru-Sn/KB アノードを用いた低電位領域でのエタノール水溶液の電解酸化において、Pt、Ru、Sn 間の 3 元協奏効果が発現することを見出し、大きく酸化電流が増加することを述べている。主酸化生成物はアセトアルデヒドと酢酸であるが二酸化炭素の選択率が增加することを述べている。XRD、TEM-EDS、ICP-OES、XAFS、XPS 解析を行い、金属と酸素の配位が重要であり、触媒表面に酸化物ネットワークが形成されていることを述べている。この Ru、Sn、Pt の協奏効果についても Ru のエタノール活性化が重要な因子であり、酸化物ネットワークを介して効果的に脱水素が進行する協奏触媒作用を提案している。

Chapter 6 「Summary and conclusions (まとめと結論)」では、本研究の成果をまとめるとともにその工学的および学術的重要性と意義を明らかにし、今後探求すべき課題を整理している。

これを要するに本論文は、エタノール水溶液の電解改質反応による純水素合成反応において高活性を示す Pt-Ru-Sn/KB 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。

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。