#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業

#### 令和 元年 5 月 1 6 日現在

機関番号: 1 3 9 0 1						
研究種目: 挑戦的研究(萌芽)						
研究期間: 2017 ~ 2018						
課題番号: 17K19087						
研究課題名(和文)廃棄木質資源をダイレクトに燃料として利用する革新的バイオマス燃料電池						
研究課題名(英文)Innovative biomass fuel cells using waste woody baimass directly as fuel						
研究代表者						
日比野 高士(Hibino,Takashi)						
名占座入子・境境子研究科・教授						
研究者番号:1 0 2 3 8 3 2 1						
交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 5,000,000円						

研究成果の概要(和文):バイオマス、特に木質バイオマスは、再生可能エネルギー資源として大きな関心を集めている。しかし、木質の主成分であるセルロースはほとんどの溶媒に不溶であり、木質材料を液体および気体の燃料に変換するためには過剰のエネルギーおよび特殊な手順を必要とする。本報告では、鋸屑およびパルプを燃料として直接利用して10 mW cm-2の桁の出力密度を与えるバイオマス燃料電池について記述すよる。この燃料電 池は単純なもので、H3P04を含浸した原料をアノードに配置し、75~250の温度で作動する。セルロースまたは その分解生成物がH20と反応してC02を生成し、クーロン効率は150以上で約95%だった。

研究成果の学術的意義や社会的意義 従来のバイオマス利用は食用資源を原料としていたので、食料と競合し穀物市場の高騰を招いた。これを解決す るために廃材や古紙等の木質資源を利用する、新たなバイオマス利用の開発が進められている。本研究では、廃 材や古紙をダイレクトに燃料として利用し、1cm2当たり数十ミリワット級の燃料電池を開発する。同様な研究と して、ヘテロポリ酸をredox媒体として使用した燃料電池が報告されているが、外側に設けた反応槽でヘテロポ リ酸をバイオマス燃料で予め還元処理する必要があった。これに対して、本研究での手法は、木質資源をオルト リン酸に混ぜ、75から250 で作動する燃料電池に供給するといったシンプルな方法である。

研究成果の概要(英文): Biomass is of significant interest in the field of advanced energy engineering, including the use of woody biomass as an energy source. However, because cellulose; the major component of wood; is insoluble in most solvents, an excessive amount of energy and special procedures are required to convert woody materials into liquid and gaseous fuel. This report describes a biomass fuel cell that provides power densities on the order of 10 mW cm-2 by direct utilization of wood sawdust and pulp as fuel. The fuel cell is simple, with H3P04-impregnated raw materials located at the anode, and is operated at temperatures between 75 and 250 °C. Cellulose or its decomposition products reacted with H20 to form C02, where the coulombic yield was approximately 95% at 150 °C or bigher Notably, the cell performance was superior to that of fuel cells with fuels 95% at 150 °C or higher.Notably, the cell performance was superior to that of fuel cells with fuels (partially oxidized or dehydrated mono- to tetrasaccharides) obtained by an external treatment of cellulose with H3P04.

研究分野: 環境化学

キーワード: 木質バイオマス 燃料電池 再生可能エネルギー

# 1.研究開始当初の背景

現在、ほぼすべてのバイオエタノールは、糖またはでんぷんに基づく原料から製造されてい る。しかし、これらの材料のエネルギー生成への使用は食料への使用と競合しており、穀物価 格の上昇につながっている。木質原料を使用してエネルギーを生成する新技術の開発に多大な 努力が払われている。セルロースは、新世代のバイオ燃料源として特に注目されている。でん ぷん類とは異なり、ほとんどの溶媒でセルロースの溶解度は低い。通常、エタノールを得る過 程では酵素分解によるグルコースの生成と、それに続いて微生物を使用したグルコースの発酵 によるエタノールの生成が行われる。しかし、これらの過程には時間と労力、および多段階の 作業が必要である。これらの障害を克服するため、セルロースからグルコース中間体を経由し てエネルギーを抽出する方法として、微生物燃料電池および酵素燃料電池が提案されている。 その他にも、光触媒と電荷担体の双方にポリ酸を使用する燃料電池がスイッチグラスまたは鋸 屑との組み合わせで開発されている。

## 2.研究の目的

環境およびエネルギー用途で木質バイオマス燃料電池にさらなる利点をもたらす可能性があ る戦略の1つは、250 前後の温度で燃料電池を作動させることである。その理由は、500 以 上の場合とは異なり、流れからの廃熱回収が 250 未満の温度ではまだ確立されていないから である。(ほとんどの場合、低品位の熱は環境に排出される)。そのため、木質バイオマス燃料 電池を中温で作動させることは有望な廃熱回収技術になると期待されており、温室効果ガスの 全排出量のより大幅な削減やよりクリーンな形のエネルギーの生成に貢献できる可能性がある。 本研究の目的は以下の通りである:(1)75~250 の温度範囲で3種類の異なる原燃料(イト スギ材鋸屑、合板鋸屑、および薄葉紙)を使用して発電する、(2)モデル燃料としてセルロー スを使用した燃料電池の電極反応速度論を記述する、ならびに(3)燃料電池で到達可能な開放 電圧(0CV)について直接および非直接のセルロースの使用を比較し、この方法の妥当性を検討 する。本研究では、中温での木質原料の溶媒としてリン酸(H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>)の使用に焦点を絞った。硫 酸や塩酸と比較して H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>の溶解力は低いが、温度を上げると線維組織を分解することができる。 さらに、燃料電池を高温で作動させると、セルロースまたはその分解生成物のアノード反応が 円滑に進行する。

# 3.研究の方法

<u>(1)材料</u> – Sn<sub>0.9</sub>In<sub>0.1</sub>P<sub>2</sub>07 粉末は、既報の手順に従って合成された。0.04 g のポリテトラフルオ ロエチレン(PTFE) 粉末を 1.00 g of Sn<sub>0.9</sub>In<sub>0.1</sub>P<sub>2</sub>07 粉末に加え、乳鉢と乳棒を使用して練り、 実験室用圧延機を使用して 250 µmの厚さに冷間圧延した。Pt/C 電極(40 wt% Pt、Elect roChem 社)のPt 充填量は、別途の記載がない限り 2 mg cm<sup>-2</sup>だった。イトスギ材(ヒノキ)および合 板からの鋸屑、ならびに 5 枚のキムワイプがバイオ燃料として使用された。セルロース、 グルコース、およびリグニンは、それぞれ和光ケミカル、Serva 社、および東京化成工業から 購入された。85% H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>(和光ケミカル)および無水 H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>(Aldrich 社)は、さらなる精製を行 わずに酸溶媒として使用された。ステンレス鋼板(SUS316、厚さ 0.3 mm、宝泉)および環状 PTFE シート(厚さ 1.0 mm、日東電工)は、それぞれアノード集電体およびシール支持体として使用 され、その外側を耐熱・耐薬品性 PTFE テープ(日東電工)で包んだ。

(2)特性評価 - 木質原料の加熱後の形態変化は、試料の表面への堆積なしに走査電子顕微鏡法 (SEM; キーエンス VE-8800)を使用して観察された。セルロースの重量平均分子量(Mw)およ び数平均分子量(Mn)は、ゲル浸透クロマトグラフィー(TRC GPC-10)を使用して決定された。 Mw および Mn の詳細な計算は補足情報に記述されている。HaPO4溶媒について、熱重量および示 差熱分析(TG-DTA)曲線は Shimadzu DTG- 60 装置を使用して、昇温速度 10 min<sup>-1</sup>で空気流の 下で室温から 275 まで測定された。 両電極からの CO2 の濃度は、 ThermoStar 質量分析計(MS、 Pfeiffer Vacuum 社)を使用して観測され、校正曲線から求められた。ろ液中の糖質およびそ の分解生成物の組成は、高速液体クロマトグラフィー-タンデム質量分析法 (LC/MS Shimadzu LC-30AD)を使用して決定された。保持時間0~10分の間の正負のイオンピークがMSを使用し て分析された。さらなる詳細は補足情報に記述されている。残渣の官能基プロファイルは、フ ーリエ変換赤外分光計 (FT-IR; Agilent Excalibur FTS-4000) を使用して求められた。データ 点は分解能 8 cm<sup>-1</sup> で 64 回のスキャンから得られた。C、O、および P の重量比は、エネルギー分 散型 X 線 ( EDX ; Quantax、Bruker 社 ) と SEM ( FEI QuantaFEG 250 ) を併用して測定された。測 定は、加速電圧 10 kV および EDX 収集時間 60 秒で行われた。X 線回折 (XRD) パターンは、回 折装置 (Miniflex II、リガク)を使用して、45 kV および 20 mA で Cu K 線 ( = 1.5432 Å) で収集された。

(3)電気化学測定 - すべての測定は、Solatron 1287 および 1260 装置を使用して 4 プローブの DC または AC 法で行われた。 電池性能は、定電位ではスキャン速度 20 mV sec<sup>-1</sup>、定電流では スキャン速度 1 および 10 mA sec<sup>-1</sup>で記録された。電流密度は、カソードの面積(0.5 cm<sup>2</sup>)に 対して規格化された。in situ サイクリックボルタンメトリー(CV)プロファイルは、スキャ ン速度 25、50、および 75 mV sec<sup>-1</sup>で収集された。5 回目の CV 曲線がデータとして記録された。 各 0CV でのインピーダンススペクトルは、周波数 0.1~10<sup>6</sup> Hz の範囲で AC 振幅 10 mV で求めら れた。

### 4.研究成果

(1)木質原料を使用する 燃料電池の製作および 性 - Sn<sub>0.9</sub>In<sub>0.1</sub>P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>-PTFE 複合膜は、75~250の 温度範囲で約 0.01 S cm<sup>-1</sup>のプロトン伝導度 があることから電解質 として選択された<sup>19,20</sup>。 Pt/C からなるアノード およびカソードはガス 拡散層に塗布された。イ トスギ材の鋸屑、合板の 鋸屑、および薄葉紙(各 15 mg) に約 135 mg の 85% H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> を含浸した。 この重量比は、現時点で 最高の電池性能が得ら れている比である。ペー スト状のサンプルをア ノードの表面に堆積し た後、電解質膜(直径: 16 mm;面積:2.0 cm<sup>2</sup>) を燃料電極と空気電極 の間に挟んだ(それぞれ 2.0および0.5 cm<sup>2</sup>)。図 1a に示すように、燃料 電極はステンレス鋼製



図1 鋸屑およびパルプを燃料に使用した燃料電池の250 における電気化学的性能:a)燃料電池の写真および図解、b)作動 温度の関数としての0CV(比較のため、セルロース、リグニン、 およびグルコースを使用した燃料電池のデータを含む)c)/-V および /-P 特性、ならびにd)電流密度20 mA cm<sup>-2</sup>における定 電流放電特性。イトスギおよび薄葉紙の場合の耐久試験ならび に合板の場合の再現性試験は同一条件(温度、電流密度、およ び燃料重量)で実施された。

の集電体に取り付け、環状 PTFE シートと PTFE テープで密封した。空気電極には、室温で H<sub>2</sub>O 蒸気で飽和した大気を供給した。

燃料電池の 0CV は、75~250 の温度範囲で観測された。試験したすべての原料について、0CV は作動温度とともに、特に 100~250 で大幅に増大した。原料なしのブランク実験で示されて いるように、この増大は H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>の分解および脱水に起因するものではない(図 1b)。3種類の原 料は室温で植物線維であるが、100 以上に加熱すると徐々に液化する(図 2)。そのため、温 度が上昇すると植物線維が H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>によって溶解または分解し、燃料電池の 0CV を増大させる。 一般に、木質材料はセルロース、ヘミセルロース、およびリグニンからなるが、薄葉紙はリグ ニンをほとんど含まない。0CV を生成する成分を決定するため、燃料となっている可能性があ るセルロースおよびリグニンについて上記と同様の方法で試験を行った。セルロースの 0CV の 温度依存性は3種類の原料の 0CV の温度依存性に非常に類似していたが、試験を行った温度範 囲でリグニンは燃料になることができなかった(図 1b)。したがって、この燃料電池ではセル ロースまたはその分解生成物が燃料として消費されていることが強く推測される。ただし、グ ルコースを燃料として使用した場合の 0CV が、3種類の原料の場合の 0CV と比較して 75 では 遥かに大きく、250 では遥かに小さくなる(図 1b)ことから、試験を行った温度でグルコー ス成分は主要な燃料源になっていないことが強く推測される。

3 種類の原料の *I-V および I-P* 特性が 250 で決定された。*I-V*の傾斜はイトスギまたは薄葉 紙よりも合板の場合に大きく(図1c)、おそらく合板に含まれる接着剤が Pt/C アノードを被毒 するためだとみられる。この結果は、合板の場合のオーム抵抗および分極抵抗(それぞれ 1.7 および 7.4 cm<sup>2</sup>)によって裏付けられており、イトスギおよび薄葉紙の場合(イトスギの場 合の値はそれぞれ 1.1 および 5.8 cm<sup>2</sup>)より大きかった。得られた最大出力密度は、薄葉紙 で 26.6 mW cm<sup>-2</sup>、イトスギで 22.0 mW cm<sup>-2</sup>、合板で 14.6 mW cm<sup>-2</sup>に到達した。注意すべき点として、すべての原料で得られる出力密度は作動温度に大きく依存したが、合板の場合は 225 と 250 の出力密度の差が非常に小さかった(図 S1)。

燃料電池の定電流放電 プロファイルは、電流密度 20 mA cm<sup>-2</sup>で 250 で記録 された。特にイトスギの場 合に電圧の停滞が生じた が、電池電圧は徐々に減少 した (図 1d)。燃料が電極 内を流れる(フロー型)の ではなく、電極に燃料が捕 捉される(バッチ型)こと に注意されたい。そのため、 利用可能な燃料の量は、電 池の放電、アノードの分極 および物質移動抵抗の増 大によって、時間の経過と ともに減少する。それでも、 電圧-時間曲線の下の面積 を積分して計算されたエ ネルギー密度は、イトスギ、 薄葉紙、および合板の場合 にそれぞれ 103、79、およ び40 Wh kg 原料<sup>-1</sup>だった。 さらに、毎サイクルの開始 時に新しいイトスギおよ び薄葉紙を補給して、サイ



**図 2** H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> を含浸した後、電極に堆積した a)イトスギ、b)合 板、および c)薄葉紙の SEM 画像。SEM 測定のため、燃料電池の 外側に熱処理を施した。

クル放電特性が評価された。特にイトスギでは、サイクル回数とともに放電時間が増加した。 この理由は、前回のサイクルにおいて未反応で残っている燃料が、新しく補給された燃料に再 度追加されるためである。注意すべき点として、アノード電位がカソード電位に一致して電池 電圧がゼロに到達したとき、追加された燃料のすべてが完全に消費されているわけではない。 これらの結果は、少なくとも3回のサイクルでアノードの劣化がないことを強く示唆している。 対照的に、合板は最初の放電後に固化したため、損傷を与えずにアノードから電解質膜を剥離 することは不可能だった。それでも、5台の同一の燃料電池サンプルから得られた放電時間が 一致していることで示されているように、合板燃料電池は再現可能な放電特性を示した。

(2)モデル燃料としてセルロ ースを使用した電池の性能 - 木質バイオマス中のセル ロースの濃度、線維長、およ び分子量は、木材の供給源お よびパルプ化工程に依存し て変動するため、分子量分布 (Mw/Mn、図 S2)が5.0の純 粋なセルロース(15 mg)が バイオマスを代表して使用 された。OCV は 75~250 ま で作動温度とともに増大し たが、275 で急激に減少し た(図 3a)。昇温酸化(TP0) 測定では Pt/C の着火温度が 約 275 であることが示さ れており(図3b) この燃料 電池の劣化温度によく一致 している。したがって、この 燃料電池の作動温度の上限 は、カソードの炭素支持体の 燃焼によって決定されてい た。この限界は、IrO2および RuO<sub>2</sub>のような耐酸性の高い 遷移金属酸化物を Pt/C の代 わりに使用することで緩和



図3 セルロースを燃料として使用した燃料電池の電気化学 性能: a)作動温度の関数としての OCV、b) Pt/C カソード について、空気流下で昇温速度 10 min<sup>-1</sup>の CO(m/z = 44) の TPO プロファイル、c) 75~250 の *I-V および I-P* 特性、 および d) 75~250 における各 OCV でのインピーダンスス ペクトル。

できるかもしれない。(酸化還元反応におけるこれらの金属の活量は、室温では比較的低いが、 作動温度の上昇とともに徐々に増加する。)

これらの観測結果に基づき、75~250の温度でセルロースを燃料として使用して、電池性能

試験が実施された。最大出力 密度は、作動温度が 75 か 5 250 に上昇するのにと もない、燃料電池の OCV の増 大および I-V の傾斜の減少 を受けて、2.6 µW cm<sup>-2</sup>から 32.7 mW cm<sup>-2</sup>に増加し(図 3c) これは温度上昇にともなう オーム抵抗よりも分極抵抗 の減少に起因するとされた (図 3d)。これは、温度が上 昇したときのセルロースの 溶解および分解に反映され ている。ただし、グルコース を使用した燃料電池でも温 度に強く依存した最大出力 密度が得られているように (75 で 0.7 mW cm<sup>-2</sup>、250 で 8.8 mW cm<sup>-2</sup>)、高温でアノ ードの速度論が改善するこ とも優れた電池性能に貢献 する重要な要素の 1 つであ る。

セルロースを使用して得 られた出力密度は、おそらく セルロースの純度が高く分



図4 セルロースを燃料として使用した燃料電池の 150 に おける電気化学的特性:a) 電流密度 2 mA cm<sup>-2</sup> での定電流 放電特性、b)スキャン速度 75、50、および 25 mV s<sup>-1</sup>、ス キャン回数5サイクルの in situ CV プロファイル、c)85% H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>、無水 H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>を使用した場合および酸溶媒を使用しない 場合に記録された温度の関数としての OCV、ならびに d)燃 料電池を電流 20 mA で連続放電した際の CO<sub>2</sub> (m/z = 44)の 質量分析スペクトル。

子量が小さいという理由で、原料を使用して観測された出力密度よりも大幅に高かった。

(3)分解したセルロースの酸化反応の反応速度研究 – 多様な金属/C アノードを用いた燃料電 池を使用した予備実験では、OCV が金属種に強く依存することが示された。250 で記録された OCV は、Pt(763 mV) > Pd(687 mV) > Rh(640 mV) > なし(599 mV) > Ru(530 mV)の 順に減少した。 また、以下のように、Pt/C アノードの Pt 充填量が増加すると燃料電池の分極 抵抗が減少することも観測された:0.0、0.6、2.0、および3.2 mg cm<sup>-2</sup>において、それぞれ14.9、 cm<sup>2</sup>。したがって、最も重要な速度論的要素はアノード反応の活性化 7.1、5.5、および4.3 だった。Pt /C 電極におけるセルロースのアノード反応の理解を深めるため、2 mA cm<sup>-2</sup>の非常に 小さい電流密度で150 における電池放電の間の電圧が記録された。約400mVで明確な電圧の 停滞状態が観測され(図 4a) この電圧で酸化反応が支配的であることが示唆された。これを 裏付ける証拠が、同条件下の燃料電池の in situ CV プロファイルで示された。小さく幅広い酸 化ピークが、スキャン速度 75、50、および 25 mV sec-1 でそれぞれ約 0.24、0.30、および 0.34 ∨に現れた(図4b)。スキャン速度にともなうこのピークシフトは、この酸化反応の速度論が質 量移動よりも電荷移動に支配されていることによるものである。したがって、さらに遅い速度 ではピーク位置が0.4 ∨まで移動したが、ピーク電流は検出不可能な値まで減少した。

セルロースの酸溶媒として HaPO4を使用しない燃料電池または無水 HaPO4を使用する燃料電池を 製作することで、アノード反応に関するさらに詳細な情報が得られた。H₃PO₄が存在しない場合 に観測された OCV は非常に低く(図 4c)、固体のセルロースは高温でも燃料にならないことが 示唆された。85% H₃P0₄と比較して、無水 H₃P0₄を使用した場合、関与および生成する H₂O の量 の差異のため、100~200 で OCV は低くなった (図 S3)。これらの結果は、セルロースの分解 に H<sub>2</sub>O が必要であることを示している。150 までの温度で無水 H<sub>3</sub>PO4の場合に観測される OCV は、電解質または電極材料に不純物として含まれる H<sub>2</sub>0 によってセルロースの一部が分解され ることで生成するという仮説が立てられた。

グルコース、スクロース、セロビオース、およびその他の炭水化物のアノード反応において、 水は反応物になることができる<sup>28-31</sup>。これらの成分は以下のように H<sub>2</sub>0 と反応して CO<sub>2</sub>を生成す る:

$C_6H_{12}O_6$	+ 6H <sub>2</sub> 0	$6CO_2 + 24H^+ +$	24e <sup>-</sup>		[1	]
$C_{12}H_{22}O_{12}$	$_{1}$ + 13H <sub>2</sub> 0	12C0 <sub>2</sub> + 48	H⁺ + 48e⁻		[2	2]
ライン MS ガ	ス分析シン	ステムを使用し	、て、アノード	およびカソー	・ドの双方の	の出口プ
炭素が 150	で観測さ	れた。( アノー	ドで生成した	: CO <sub>2</sub> の一部か	「電解質膜を	を透過し
	$\rightarrow$ $ \rightarrow$ .					

オンラ ガス中の二 してカソー 酸化炭 ドに達していた。) ステンレス鋼の代わりに金メッシュを集電体として使用し、Ar キャリアガ スをアノード内に流した。

電流 20 mA で電池を放電中に、CO2 濃度の明確な増加が確認された(図 4d)。ファラデーの法 則に従って計算されたクーロン効率は 94.9%だった(単糖および二糖についてはそれぞれ式 1 および2に基づき 32、その他の糖質については対応する反応式に基づく(補足情報を参照))。 電池の放電中に CO、HCOH、または HCOOH は検出されなかった。同様に、作動温度が 200 およ

び250 でも高いクーロン効率が観測された。

(4) OCV に関するセルロースの直接および非直接の使用の比較 - この燃料電池の利点を明確に するため、H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>を用いたセルロースの外部処理によるセルロースの溶解および分解が行われた。 得られた分解生成物を使用して燃料電池を作動し、その OCV 特性を、セルロースを燃料として 直接使用した燃料電池の特性と比較した。アノード材料の調製に複数の変更が加えられた:セ ルロース(0.1g)と85% H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>(0.9g)の混合物をガラス容器に加え、室温で真空に引いた後、 目標温度まで加熱した;各温度での処理時間は約30分だった;懸濁液を直ちに少量(20 mL) の脱イオン水と撹拌し、ろ過して可能な限り高い濃度のろ液を得た;残渣は大量の脱イオン水 で洗浄した。ろ液と残渣の双方について、多様な方法で別個に特性評価を行った。

セルロースは H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>を用いて 100、150、および 200 で処理された。これらの処理方法の結果では、100 で収集されたろ液にセルロース由来の生成物は含まれておらず、150 および 200 で収集されたろ液は部分的に酸化または脱水された単糖、二糖、三糖、四糖であることが示さ

れた(150 でのろ液を図 S4 に示す; ろ液と残渣の双方の全成分を表 S1 に要約する)。 またこれらの結果は、100 で処理された残渣の C、0、および P の重量比がセルロースと類 似していることを示しており、150 および 200 で処理された残渣の組成は C が豊富で P が微 量であることが示されている(図 S5)。FT-IR スペクトルおよび XRD パターンでも同様の結果が 得られている。100 で処理された残渣は、セルロースとほぼ同一の官能基および構造相(図 S6)を持っていた。対照的に、150 および 200 で処理された残渣は、IR スペクトルに C=Q(1700 cm<sup>-1</sup>) バンドおよび C=C (1600 cm<sup>-1</sup>) バンドの新しい特徴があり、0-H(3300 cm<sup>-1</sup>) バンドの強 度が低下し、無定形炭素に帰属される XRD パターンを示した(図 S6)。したがって、組成およ び構造の特性に基づき、分解残渣はバイオコークスからなる。

ろ液および残渣を燃料に使用して 75~250 の温度で生成された 0CV を、セルロースを燃料 として使用した燃料電池の 0CV と比較した。予想される通り、150 および 200 で処理された 残渣から得られた 0CV は著しく低かった。150 および 200 で処理されたろ液から得られた 0CV は、75 および 100 で処理されたろ液から得られた 0CV よりも大きかったが、150~250 の 間の温度で処理された場合よりも遥かに低かった。

この予想外の結果は、最初のろ過過程の際に生成物が脱イオン水で希釈されたことや、残渣 の表面に強く吸着した生成物を収集できなかったことで、生成物の回収が影響を受けたとして 説明できる。さらに、ガラス容器からのナトリウムの混入がアノード反応に影響を及ぼしてい るおそれがある。対照的に、セルロースを燃料として直接使用した場合はこれらの影響を回避 することができ、高温での 0CV が増大する。この利点は、多段階の処理を必要とする木質バイ オマスでさらに重要になることが予想される。

(\*図 S1-6 および表 S1 は doi: 10.1149/2.0511706 jes にて公開中。)

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計7件)

Intermediate-temperature electrolysis of energy grass Miscanthus sinensis for sustainable hydrogen production, Masaya Ito, Tetsuya Hori, Shinya Teranishi, Masahiro Nagao, <u>Takashi Hibino</u>, Scientific Reports, 8 巻(頁: 16186), 2018 年, 査読あり, doi.org/10.1038/s41598-018-34544-y

Direct electrolysis of waste newspaper for sustainable hydrogen production: an oxygen-functionalized porous carbon anode, <u>Takashi Hibino</u>, Kazuyo Kobayashi, Masaya Ito, Masahiro Nagao, Mai Fukui, Shinya Teranishi, Applied Catalysis B : Environmental, 231 巻 5 号 (頁: 191-199), 2018 年, 査読あり, doi.org/10.1016/j.apcatb.2018.03.021

An intermediate-temperature biomass fuel cell using wood sawdust and pulp directly as fuel, <u>Takashi Hibino</u>, Kazuyo Kobayashi, Peiling Lv, Masahiro Nagao, Shinya Teranishi, Toshiyuki Mori, Journal of The Electrochemical Society, 164 巻 6 号(頁: F557-F563), 2017 年, 査読あり, doi: 10.1149/2.0511706jes

〔学会発表〕(計4件)

堀 哲也,伊藤雅哉,寺西真哉,長尾征洋,<u>日比野高士</u>,廃棄プラスチックを直接使用した 燃料電池発電,電気化学会第 86 回大会,2019 年

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

http://www.urban.env.nagoya-u.ac.jp/~hibino/

6 . 研究組織

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。