

海水電解用酸素発生陽極を用いた新規なイオン交換膜法の検討

加藤 善大

東北工業大学工学部

概要

私たちが開発している海水電解用酸素発生電極の製塩産業への貢献を考えている。製塩工程における採かんのさいに用いるイオン交換膜法へ応用である。採かん工程では、陰極室では $2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2 + 2\text{OH}^-$ と Na^+ の移動により水酸化ナトリウムおよび水素ガスが生成する。このため、水酸化ナトリウムの生成による pH の上昇により、溶解度積の小さい水酸化マグネシウムは析出して陰極室の陽イオン交換膜の性能に影響を与える。これを防ぐため、工業的には大量の塩酸を加えることにより中和して析出を防いでいるという現状がある。

酸素発生陽極を使った海水電解においては、模擬海水を陽極室に直接送り、酸素発生により pH を低下させた溶液を陰極室に送り、水素発生により中和する方式が最もエネルギーロスの少ないことが明らかとなっている。これを採かん工程でのイオン交換膜法に応用する。これにより、水酸化マグネシウムなどの析出を防げると考えられる。また、これまで大量に加えていた塩酸を削減でき、さらには pH の同じ溶液中で電解することで、電解電圧の低減を図ることができると考えられる。

本研究において、不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極および $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物電極を用い、送液方法の違いにより、電解電圧、塩分濃度および pH がどのように変化するかを調べた。脱塩室へ送液を継続することにより、電解電圧の上昇を防ぐことができることがわかった。不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極においては、脱煙室へ送液を継続し、提案している送液方法を行っても、同一 pH での電解を行うことができなかった。これに対して、 $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物電極を用いた場合、塩素の発生を 1% 以下に抑えることができるため、陽極室の pH を十分に下げることができるようになる。このため、陰極室の中和が進み、陽極室および陰陽極でほぼ同一の pH 2 程度での電解が可能になった。また、水酸化マグネシウムの析出もなく、イオン交換膜の劣化も見られなかった。

1. 緒言

私たちは、化石燃料の枯渇および地球温暖化に向けて、砂漠での太陽電池発電、砂漠沿岸での海水電解による水素生成、水素と二酸化炭素からのメタン生成、エネルギー消費地での二酸化炭素回収からなる図 1 の『グローバル二酸化炭素リサイクル』を提案している¹⁾。現在のところ、クリーンエネルギーとして期待される水素はエネルギー消費地へ大量輸送する技術がなく、水素燃焼施設も普及していない。そこで、天然ガスとして使われているメタンの形に水素を変え、既存のインフラを用いて、大量輸送お

よび燃料としての利用を図るものである。メタンに変えるには中間体としての水素は欠かせない。大量の水素製造には、水の電気分解が必要である。しかし、世界にエネルギーを供給することを考えると、資源の乏しい淡水を用いることは難しく、水素製造には海水電解を用いざるを得ない。

このシステムの実現の鍵となるのは、海水電解用陽極の創製である。従来、海水電解は、塩素製造を目的に行われてきた。しかし、水素を供給するたびに、塩素を発生させるわけにはいかない。海水電解用陽極は、導電体

グローバル二酸化炭素リサイクル

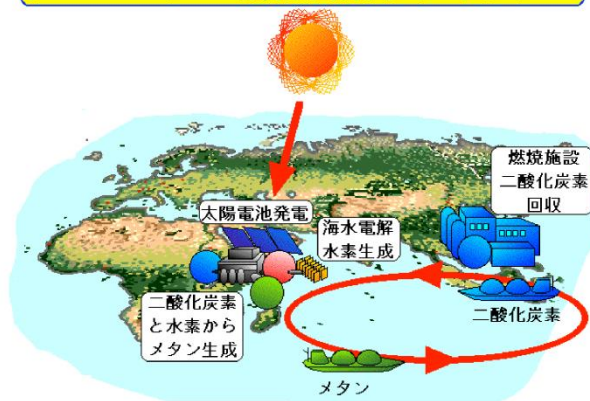


図1 『グローバル二酸化炭素リサイクル』の概念図

チタン基板、酸化イリジウム中間層、アノード電着法で形成した γ - MnO_2 複酸化物電極活物質の3層で構成される。導電体として海水中で電解するため耐食性に優れた硫酸エッチングを施したチタン基板を用いている。アノード電着するさいに絶縁性の TiO_2 酸化皮膜を形成するため、電極基板は電子を受け取る電極の作用を失うこととなる。このため、 TiO_2 酸化皮膜の形成を避けるために、 TiO_2 と同じルチル構造を持ち、電子伝導性を備えた厚さ $1\ \mu\text{m}$ 程度の酸化イリジウム(IrO_2)層をチタンに形成し、チタンと電極活物質の間の中間層として用いている。電極活物質には、塩素を出さず酸素のみを出す性質と耐久性が求められる。この電極の創製の経緯は次のようである。M. Moritaらは、白金族酸化物を形成したチタン基板電極上に形成した酸化マンガン電極は、塩化ナトリウム水溶液中での電解で90%程度の高い酸素発生効率を示すことを報告している²⁾。泉屋らは、熱分解法で酸化マンガンの結晶構造のなかで γ - MnO_2 がアノード分極下で安定な酸化物であることを報告している³⁾。これらを基に、藤村らはアノード電着法により形成したMoを含む γ - MnO_2 型 $\text{Mn}_{1-x}\text{Mo}_x\text{O}_{2+x}$ 複酸化物が酸素発生効率100%を維持することが報告している⁴⁾。海水電解に求められるのは、酸素発生効率100%、高耐久性およびできるだけ小さい反応過電圧の電極を用いて、できるだけ小さい電解電圧で酸素を生成することであり、これまで $\text{Mn}_{1-x}\text{Mo}_x\text{O}_{2+x}$ 複酸化物電極を基に改良を重ねてきた。

これまでの研究から、酸化イリジウム(IrO_2)と同じルチル構造を持つ酸化スズ(SnO_2)となるスズでイリジウムを置換した中間層は、チタン基板と同じルチル構造で単相の $\text{Sn}_{1-x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 複酸化物であり、この中間層を用い、 $0.2\ \text{M}\ \text{MnSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O} - 0.003\ \text{M}\ \text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O} - 0.006\ \text{M}\ \text{SnCl}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ をpH 0に調製し、 90°C に加熱して用いて $600\ \text{A}\cdot\text{m}^{-2}$ の電流密度で30分間ごとに溶液を交換し、3回合計90分間行ってアノード電着した $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物電極は、塩酸でpH 1に調製した 25°C の $0.5\ \text{M}\ \text{NaCl}$ 溶液中、電流密度 $1000\ \text{A}\cdot\text{m}^{-2}$ において、4,300時間程度99%の酸素発生効率を維持し、高い耐久性を示している⁵⁾。実用電解では電流密度 $1,000\ \text{A}\cdot\text{m}^{-2}$ で1年程度すなわち10,000時間程度の耐久性が求められる。

電極の劣化の要因は、チタン基板の局部酸化による電極活物質の剥離であることが最近の研究から明らかとなっている⁶⁾。電極活物質を形成するさいのアノード電着および酸素発生のためのアノード分極中の酸素の内方への拡散をいかに抑制し、チタンの酸化を防止する必要がある。このためには、中間層および基板材料の両方からアプローチが不可欠であると考え、 $\text{Sn}_{1-x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 複酸化物中間層を形成するさいのイリジウム-スズ溶液組成、熱分解温度、被覆方法の最適条件を検討してきた。

この電極の実用化には、できるだけ小さい電解電圧で電解する必要がある。このためには、エネルギーロスの少ない送液方法が求められる。図2のように、海水原液を陽極室に直接送り、そこでの酸素発生($2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}^2 + 2\text{OH}^-$)によりpHを十分に低下させた溶液を陰極室におくり、水素発生($2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2 + 2\text{OH}^-$)により中和して排水する方式が最もエネルギーロスの少ない電解ができることから、pH 1程度の塩酸酸性海水中でも高活性、高耐久性を有する海水電解用陽極の創製が求められ、 $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物が優れた性能を有することが明らかとなっている⁷⁾。これを製塩分野の採かん工程のイオン交換膜法に応用する。

採かん工程は、図3(a)のようにイオン交換膜法を用い、陽イオン交換膜と陰イオン交換膜を交互に並べて塩分を分離濃縮することからなる。このとき塩分が除去される希釈海水と塩分が濃縮される濃縮海水が交互に形成される。このさい、陽極室では $2^- \rightarrow \text{Cl}_2 + 2\text{e}^-$ により塩素ガス、陰極室では $2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2 + 2\text{OH}^-$ と Na^+ の移動により水酸

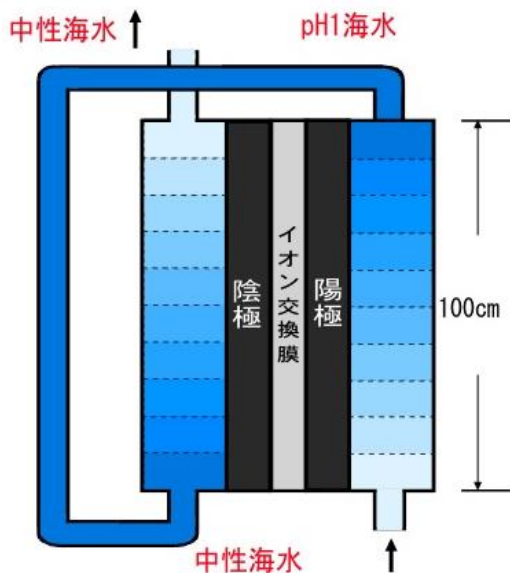


図2 エネルギーロスを考慮した電解システム

化ナトリウムおよび水素ガスが生成する。水酸化ナトリウムの生成による pH の上昇により、溶解度積の小さい水酸化マグネシウムは析出して陰極室の陽イオン交換膜の性能に影響を与える。このため、工業的には塩酸を加えることにより中和して析出を防いでいる。私たちは、図 3(b) のように、陽極に海水電解用酸素発生陽極を用い、酸素発生により pH を十分に低下させた溶液を陰極室におくり、水素発生により中和して排水するしくみをイオン交換膜法に応用することを考えている。これにより、水酸化マグネシウムなどの析出を防げると考えられる。また、塩酸を加える費用を削減できる。更に、pH の同じ溶液中で電解することで、過電圧の低減をはかることができると考えられる。

本研究において、イオン交換膜法に酸素発生電極を用いたときの本方式の可能性を検討するため、繰り返し用いることのできる酸素発生効率 28% 程度の不溶性 $\text{Sn}_{1-x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極を用いて実験をおこなった。

2. 研究方法

2.1 電極作製

図4に本実験における電極作製手順を示す。①導電体チタン基板をアセトンで超音波洗浄した後、0.5 M HF に 5 分間浸けて自然酸化皮膜を除去した。電極の密着性の向上のために、90°C の 11.5 M H_2SO_4 溶液に 20 分間浸けて電極表面を粗くした。その後、基板を水道水で 1 時間水洗いをして酸化チタンを除去した。② $\text{Sn}_{1-x}\text{Ir}_x\text{O}_2/\text{Ti}$ 基板を作

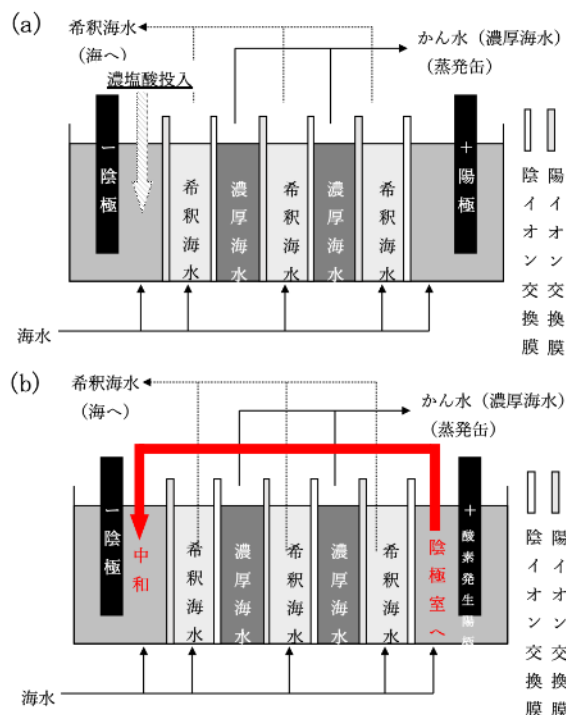


図3(a) イオン交換膜法のしくみ、(b)本研究での新規なイオン交換膜法のしくみ

製するため、 $[\text{Ir}^{4+}] = 0.13 \text{ M}$, $[\text{Sn}^{4+}] = 0.13 \text{ M}$ のブタノール溶液を基板に均一塗布し、90°C で乾燥、450°C で熱分解をそれぞれ 10 分間行なった。この操作を 2 回繰り返す、最後の 1 回は 90°C で乾燥した後、450°C で 60 分間熱分解を行なった。基板を 0.8 x 1.6 cm 表面積 1.8 cm^2 に切り出し、それぞれに 10 cm の $\phi 1.0 \text{ mm}$ のチタン線をスポット溶接した。③電極活物質の形成前に、電極基板を 10 M NaOH, 1 M H_2SO_4 で電解洗浄を行った。その後 11.5 M H_2SO_4 を 40 ml 投入し、pH 0.45 に調製した 0.2 M MnSO_4 - 0.003 M Na_2MoO_4 - 0.006 M SnCl_4 溶液を用い、液温 90°C、電流密度 600 Am^{-2} で 30 分のアノード電着を 3 回行い、電極活物質を形成した。

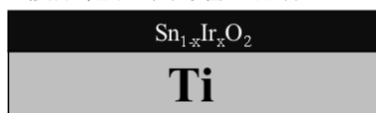
2.2 模擬電解セル作製

図5のように、アクリル樹脂を素材として、容積 190 ml の実証セルを CAD により設計して製作した。陽極室、脱塩室、濃縮室、脱塩室、陰極室と並び、陽極室および陰極室には pH 測定室を設けた。なお、各室には、溶液を下から送液して上から出す取水口がある。イオン交換膜は AGC ロジテイクス株のセレミオンの陽イオン交換膜 CSO と陰イオン交換膜 ASV をそれぞれ用いた。模擬海水は中性の 0.5 M NaCl を用い、電解電流密度は 1,000 Am^{-2} で

①導電体チタン基板



②スズイリジウム 複酸化物中間層の形成



③電極活物質の形成

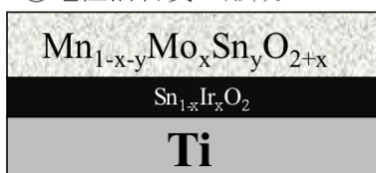


図4 電極作製手順

固定して電解を行った。なお、送液速度は脱塩室においては脱塩室が脱塩しない最小速度である 7.2 mLmin^{-1} 、陽極室および陰極室においては 18 mLh^{-1} 、 90 mLh^{-1} 、 180 mLh^{-1} 、 1.8 Lh^{-1} で送液し、各送液速度における陰極室と陽極室の pH の変化および電解電圧を調べた。

陰極には不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 複酸化物電極 (Insoluble electrode: IE)、陽極に不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 複酸化物電極および $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生電極 (Oxygen evolution anode: OEA) を用いた。

2. 2 測定項目

セル電圧 (V)、陽極室および陰極室の pH、濃縮室および脱塩室の塩分濃度 (wt%) を電解時間 (t) 毎に測定した。セル電圧は、直流電源装置に表示される電圧を用いた。pH は、TOKO ハンディ TPX-999 (東興化学研究所 (株) 製) を用いて測定した。塩分濃度はコンパクト塩分計 LAQUAtwin-salt-22 (堀場製作所 (株) 製) を用いて測定した。

2. 2 送液および電解方法

2. 2. 1 脱塩室への送液

これまで、脱塩室の塩分濃度が低下すると、電解電圧が増大することがわかっている。このため、脱塩室の塩分濃度を一定に保てる最小の送液速度による循環をめざし、その値を見極める。

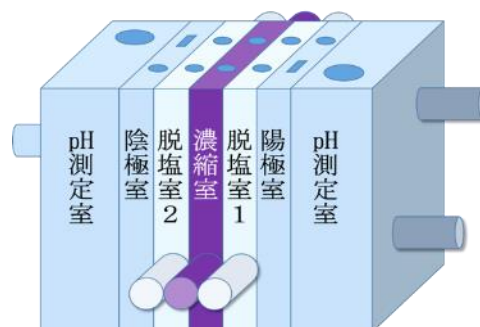


図5 模擬電解セルの模式図

実証セルの陰極室および陽極室を静置状態とし、脱塩室に図 6 に示すように海水を循環させる。送液速度を $0.0 \text{ mLmin}^{-1} \sim 32.0 \text{ mLmin}^{-1}$ とし、脱塩室の塩分濃度が保たれる最小の送液速度を見極める。なお、ポンプの性能上、 7.2 mLmin^{-1} 未満での送液は設定した値通り送液し続けることが困難なため、 7.2 mLmin^{-1} 未満の送液は行っていない。

2. 2. 2 陽極室と陰極室の片道循環

2.2.1 で決定した適切な送液速度による送液に加え、図 7 で示すように、中性の模擬海水を陽極に送り、陽極室の H^+ 濃度の高い模擬海水を陰極室に送ることで、 OH^- 濃度の高い陰極室の模擬海水を中和し排出する方法で陰極室の中和を試みた。なお、送液速度は $18.0 \text{ mLh}^{-1} \sim 1.8 \text{ Lh}^{-1}$ とし、陽極に不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極、 $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生電極をそれぞれ用いた場合どのような変化があるのかを比較した。

3. 結果と考察

3. 1 各送液速度における脱塩室の片道循環による塩分濃度およびセル電圧と電解時間の関係

図 8 は、陽極に不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極を用いたさい、各送液速度で送液を行ったときの脱塩室の塩分濃度と電解時間の関係を示したグラフである。電解前の脱塩室の塩分濃度は 2.8% 程度である。図 8 のように、海水を全く流さない 0.0 mLmin^{-1} のとき、塩分濃度はほぼ 0% となっている。これに対して、送液速度が 7.2 mLmin^{-1} 以上の時は塩分濃度がおおむね安定していることがわかる。よって、脱塩室における送液速度は 7.2 mLmin^{-1} を適正な送液速度とし、以降の実験における脱塩室の循環にはこの送液速度を用いる。

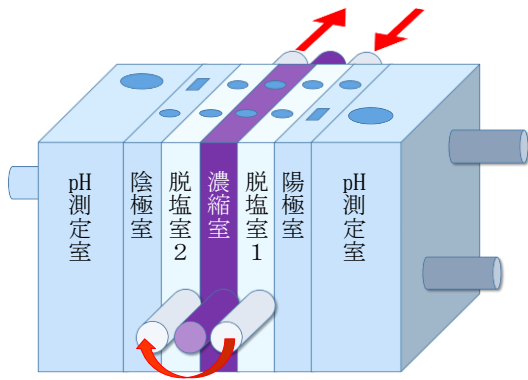


図 6 脱塩室への循環

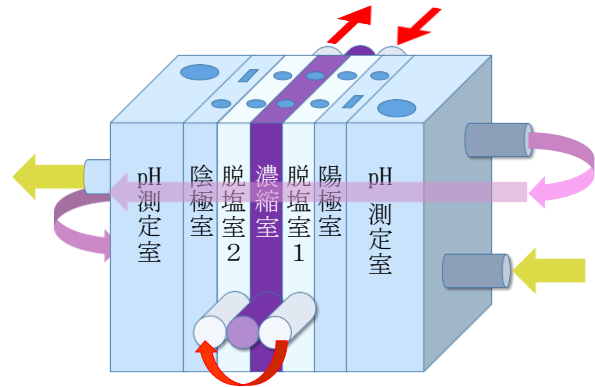


図 7 陽極室から陰極室への循環

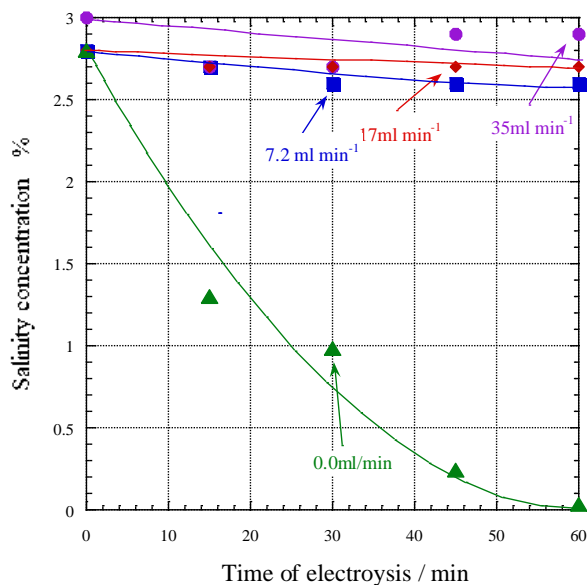


図 8 脱塩室への送液速度および塩分濃度と電解時間の関係

3. 2 脱塩室と同時に各送液速度において陽極室および陰極室の海水循環を行った際の、pHと電解時間の関係の比較／不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物陽極

図 9 は、陽極に不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極を用い、陰極室および陽極室の循環を行って模擬海水を電解したさいに、各送液速度において陰極室および陽極室の pH がどのように変化するかを示したグラフである。この送液は陽極室の海水を陰極室に送ることによって陰極室の pH を下げることが狙いであるが、図からわかる通り、陽極室の pH 低下が陰極室の pH 上昇に比べ緩やかで、かつ十分に H^+ が増大していないために、送液速度を変えても陰極室を pH 7 以下にすることができなかった。この原因としては、不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極の酸素発生効率が 28.16%

であることがあげられる。陰極室では水素発生 ($2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2 + 2\text{OH}^-$) の反応が 100% 起きることにより pH が増大していくのに対し、陽極の pH が下がる反応である酸素発生 ($2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{O}_2 + 4\text{H}^+ + 4\text{e}^-$) の反応は 28.16% 程度であり、残りの 71.84% は塩素発生 ($2\text{Cl}^- \rightarrow \text{Cl}_2 + 2\text{e}^-$) が起きているため、pH の低下が阻害されていることが挙げられる。

3. 3 脱塩室の循環と同時に各送液速度における陽極室および陰極室の海水循環を行ったさいの pH と電解時間の関係の比較／ $\text{Mn}_{1-x}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生陽極

図 10 は、 $\text{Mn}_{1-x}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生陽極を用いて、適切な送液速度での脱塩室の海水循環、陽極室および陰極室の海水循環を各送液速度において行ったさ

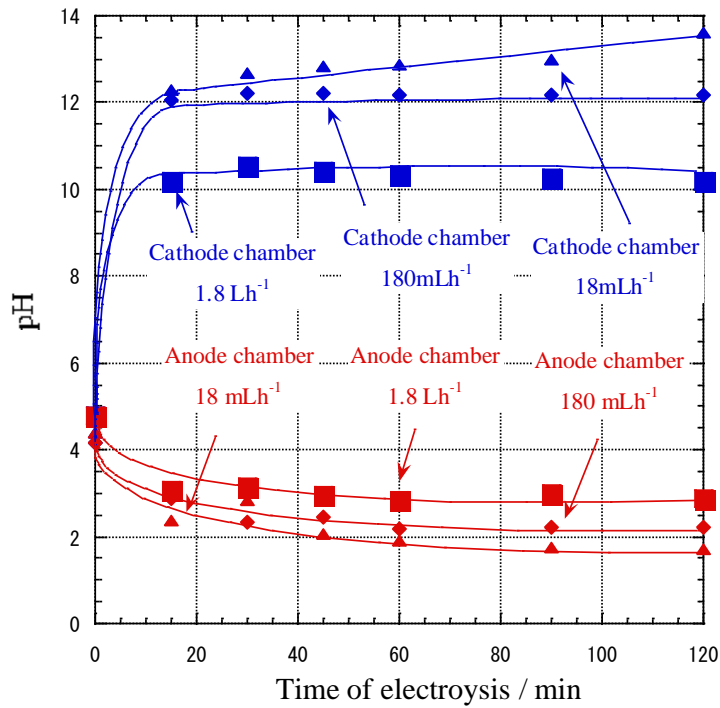


図 9 脱塩室への送液における塩分濃度およびセル電圧と電解時間の関係

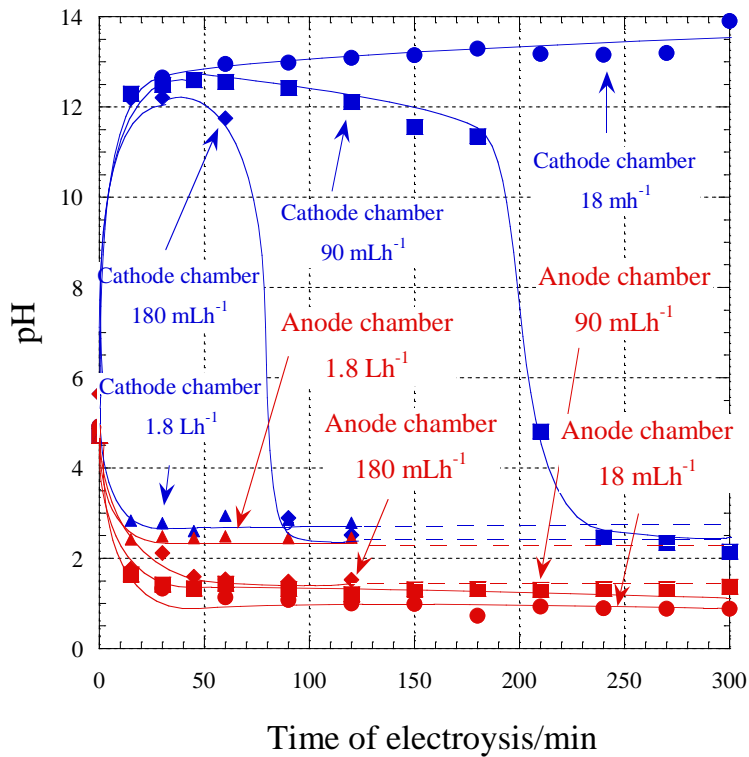


図 10 脱塩室への送液と同時に陽極室から陰極室へ送液を行ったさいの pH と電解時間

いの陰極室および陽極室の pH と電解時間の関係を示したグラフである。3.2 で行った不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極を用いた同じ循環では、送液速度を変えても陰極を中和することができなかったのに対し、こちらでは中和に時間はかかっているが、送液速度 90 mLh^{-1} 以上の送液速度において pH 2 程度まで中和していることがわかる。3.3 の結果に対しこのような差が出たのは、陽極における酸素発生 ($2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{O}_2 + 4\text{H}^+ + 4\text{e}^-$) の反応が $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生陽極を用いることにより、99% 起きているためであると考えられる。このことで、陰極の pH 増大と陽極の pH 低下のつり合いが取れ、陰極室を中和するに至った。また、模擬海水は中性のものを使用しているのに中和点が pH 7 を下回ったことには、陽イオン交換膜の性能が起因していると考えられる。今回使用した陽イオン交換膜 CSO の Na^+ 透過率は 97% である。すなわち、3% 程度 H^+ も透過するため、陰極室には脱塩室から H^+ が輸送され、一部中和することで pH の増大が抑制されたものと考えられる。

以上のことから、 $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生陽極を用い、脱塩室への送液を継続しながら塩分濃度を一定に保ち、さらに陽極室から陰極室へ送液することにより、陽極室および陰極室の pH をほぼ同一に保持することができる。

4. 結論

本研究では、製塩分野におけるイオン交換膜法を用いた海水の塩分を分離濃縮する工程 (採かん) おける課題を解決するため、不溶性 $\text{Sn}_{1+x}\text{Ir}_x\text{O}_2$ 酸化物電極および $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物電極を用い、送液方法の違いにより、電解電圧、塩分濃度および pH がどのように変化するかを調べた。

$\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生陽極を用いたイオン交換膜法において、脱塩室に模擬海水を一定速度以上送液し続け、さらに陰極室および陽極室の模擬海水循環させることにより、陰極室の pH の中和は可能であり、

陰極室および陽極室において同一 pH での電解が可能である。このため、水酸化マグネシウムの析出を十分に抑えることができる。一方で、 $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}$ 複酸化物酸素発生電極は小さなセルの中、pH がとても低い環境において電解に耐えねばならないことから、酸素発生効率が低下しやすくなり、劣化が早まる恐れがある。このことから、温度、pH および海水濃度の過酷な条件での酸素発生陽極の創製を行う必要性がある。

5. 謝辞

この研究を行なってくれた学部学生の金井琴乃さんに感謝の意を表したい。

6. 文献

- 1) 橋本功二, 熊谷直和, 加藤善大, 泉屋宏一, *Zairyo-to-Kankyo*, 58, 250-259 (2009).
- 2) M. Morita, C. Iwakura, H. Tamura, *Electrochim. Acta* 22 (1977) 325.
- 3) Izumiya, E. Akiyama, H. Habazaki, N. Kumagai, A. Kawashima, K. Asami and K. Hashimoto: *J. Appl. Electrochem.* 27 (1997) 1362-1368.
- 4) K. Fujimura, T. Matsui, H. Habazaki, A. Kawashima, N. Kumagai and K. Hashimoto, *Electrochim. Acta*, 45, 2297 (2000).
- 5) Z. Kato, J. Bhattarai, K. Izumiya, N. Kumagai, K. Hashimoto *Applied Surface Science*, 257, 8230-8236 (2011).
- 6) Zenta Kato, Masaki Sato, Yusuke Sasaki, Koichi Izumiya, Naokazu Kumagai and Koji Hashimoto, *Electrochim. Acta*, 116 (2014) 152-157
- 7) Z. Kato, K. Izumiya, N. Kumagai, K. Hashimoto, *J Solid State Electrochemistry*, 13 (2009) p219-224

New Ion Exchange Membrane Method Using Oxygen Evolution Anode for Seawater Electrolysis

Zenta Kato

Tohoku Institute of Technology

Summary

Contribution to salt industry of oxygen evolution anodes for seawater electrolysis we have developed is considered. It is application to the ion-exchange membrane process used in picking concentrated seawater in salt making process. Sodium hydroxide and hydrogen gas are generated in the cathode compartment in the process. The pH increase results in $\text{Mg}(\text{OH})_2$ deposition on cation-exchange membrane in the cathode compartment, and the function of cation-exchange membrane is lost. To avoid the deposition, hydrochloric acid is added in the cathode compartment industrially.

From our research the $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}/\text{Ir}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_2/\text{Ti}$ anodes showed more than 99.9% oxygen evolution efficiency for 4200 h in the electrolysis of 0.5 M NaCl solution of pH 1 at the current density of 1000 Am^{-2} . It found that neutral sodium chloride solution was supplied first to the anode compartment and the low pH solution from the anode compartment was supplied to the cathode compartment. Such seawater supplying method contributes to energy saving and a little way of energy loss.

We used our oxygen evolution anode and solution supplying method for ion-exchange membrane process. Neutral sodium chloride solution was supplied and electrolyzed first to the anode compartment, and the low pH solution in the anode compartment was supplied to the cathode compartment. We predict that the application avoids $\text{Mg}(\text{OH})_2$ deposition, the hydrochloric acid is reduced, and moreover the cell voltage is small by electrolysis in the same whole pH.

In my research, we made a test cell and examined cell voltage, the pH and concentration of sodium chloride changed by the solution supplying method using the $\text{Mn}_{1-x-y}\text{Mo}_x\text{Sn}_y\text{O}_{2+x}/\text{Ir}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_2/\text{Ti}$ anode. We found that the pH of the anode compartment and the cathode compartment could be maintained fixedly similarly mostly by continuing to supplying the solution from the anode compartment to cathode compartment. This suggests the reduction in the cell voltage in during electrolysis. The degradation of ion exchange membrane was not observed due to $\text{Mg}(\text{OH})_2$ deposition.