

論文の内容の要旨

No. 1

住 所 埼玉県川口市芝西2-29-14

氏 名 白崎 義則

水素を化石燃料などの1次エネルギーから製造し利用する場合、1次エネルギー採掘から水素エネルギーの利用に至るまでの全体のエネルギー効率が既存のシステムよりも優位である必要があり、特に水素製造工程における効率の向上が不可欠である。天然ガスを改質して得る水素を燃料として燃料電池自動車を走行させる場合、資源の井戸元から車両における最終消費にいたるいわゆる Well To Wheel (WTW) 効率が、ガソリンを燃料とするハイブリッド自動車に対して格段の優位性を持つためには水素製造工程における効率を80%程度にまで高めることが必要とされている。しかし、従来の都市ガス(天然ガス)を原料とする水素製造システムは、水蒸気改質、一酸化炭素変成、吸着分離水素精製から構成されており、その水素製造効率は65%程度に止まっている。

そこで、水素分離膜を改質器中に設置したメンブレンリアクター型改質器(水素分離型リフォーマー)の開発に取り組んだ。これは、都市ガスの改質反応で生成した水素を反応器内部に設置したパラジウム系合金薄膜を使用した水素分離膜により選択的に抜き出して高純度水素を製造するものであり、システムの小型化やシンプル化に加えて高効率化が期待される。また、水素分離型リフォーマーの水素製造能力は、膜モジュールの水素透過性能に支配されており、その向上が直接リフォーマー性能に寄与することから、高性能な合金膜材料の開発を並行して進めた。加えて、水素分離型リフォーマーの更なる性能向上を目指した触媒一体化水素分離膜モジュールの開発にも取り組んだ。

本論文は以下のように全5章から構成されており、各章の概要は以下の通りである。

第1章では、本研究の背景、目的について述べた。

第2章では、本論文の概要をまとめた。

第3章では、高い水素透過性能を有する材料開発を目的として、パラジウム銀合金の高性能化と銀以外の金属元素を添加したパラジウム二元系合金膜について、水素分離型リフォーマーの使用温度である723~823Kにおける水素透過性能を検討し、希土類との合金が優れた水素透過性能を有することを示した。膜の水素透過速度を高めることによって、水素製造能力あたりの設備コストの低減が可能となるために、水素分離型リフォーマーの実用可能性を高めることができた。

第4章では、パラジウム系合金水素分離膜と支持体を複合化した水素分離膜モジュールと水蒸気改質触媒を組み込んだ40 Nm³/h級水素分離型リフォーマーを用いる水素製造システムを製作、運転試験を実施し、原料供給量、温度や圧力等のパラメーター変化に対する水素製造量、転化率、水素製造効率および水素回収率を求めてシステムの特性を明確化かつ最適化することで、総合効率80%以上、水素製造量40 Nm³/h以上及び水素純度99.999vol%以上の性能を発揮できることを明らかにした。

第5章では、水素分離型リフォーマーの更なる進化を目的として、触媒一体化水素分離膜モジュールの開発と都市ガスの水蒸気改質による水素製造法を提案した。本モジュールは、触媒機能を付与した支持体と水素透過膜が一体となった新しいコンセプトの水素分離膜モジュールであり、従来の水素分離膜モジュールのように、別途改質触媒を配置する必要がないため、水素分離型リフォーマーの更なるコンパクト化が可能になった。水素製造性能評価の結果、本器が従来の固定層触媒充填型の膜改質装置よりもコンパクトにもかかわらず同等の能力を有しており、水素製造用の水素分離膜モジュールとして十分利用できることを明らかにした。

第6章では、研究成果をまとめ総括した。

以上、本研究では、種々のパラジウム系水素分離膜の水素透過性能の評価を行い、高い水素透過性能を有する希土類とパラジウムからなる合金にて作製した水素分離膜モジュールを用いて、40 Nm³/h級水素分離型リフォーマーシステムを開発、運転試験を実施した。その結果、本システムは、水素純度99.999vol%で水素製造量40 Nm³/h以上の能力を有し、水素製造効率が80%以上になることを実証した。また、触媒機能を付与した支持体と水素透過膜が一体となった新しいコンセプトの触媒一体化水素分離膜モジュールの開発を行い、水素分離型リフォーマーよりも装置容積あたりの水素製造能力を高めることが可能なことを明らかにした。