

## 論文審査の結果の要旨

No. 1

住 所 埼玉県川口市芝西 2 - 2 9 - 1 4

氏 名 白崎 義則

水素社会導入の1つの象徴である燃料電池車のための水素製造に注目が集まっている。ここで、都市（天然）ガスを改質して製造される水素を燃料として燃料電池自動車を走行させる場合、天然ガス田（Well）から車両（Wheel）における最終消費にいたるいわゆる Well To Wheel 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る多段階工程で、その水素製造効率は 65%程度に止まることから、目標効率の達成には抜本的なプロセス転換が求められた。

そこで本研究では、水素分離膜を改質器中に設置した水素分離型リフォーマーすなわちメンブレンリアクター型改質器の開発によって製造効率の大幅な向上を目指した。これは、反応器内部に導入したパラジウム系合金を薄膜化した水素分離膜により、都市ガスの改質反応で生成した水素をその場で選択的に抜き出して高純度水素を製造するものであり、システムのコンパクト化やシンプル化とともに高効率化が期待されたためである。

本論文は以下のような成果を得ている。

- 1) 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 723~823 K における水素透過性能を検討し、希土類金属特にホロミウムとの合金が優れた水素透過性能を有することを示した。それによって、水素製造能力（単位容積当たりの水素製造量）あたりの設備コストの低減が可能となった。
- 2) パラジウム-希土類合金系水素分離膜と水蒸気改質触媒成型体から成る膜モジュールを組み込んだ 40 Nm<sup>3</sup>/h 級水素分離型リフォーマーによる水素製造システムを設計製作した。性能試験として、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や都市ガス（メタン）の転化率の変化を調べた。その結果、水素製造効率および水素回収率を指標にすることによってシステムの特性を明確化することができ、それらを最適化することで総合効率 80%以上、水素製造量 40 Nm<sup>3</sup>/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。

3) 水素分離型リフォーマーの水素製造能力のさらなる向上を目指して、新たな設計方針のもと、触媒一体化水素分離膜モジュールの開発を行った。本器は、触媒機能を付与した膜支持体と水素透過膜を一体化した水素分離膜モジュールであり、上述の触媒充填層と水素分離膜を組合わせたリアクターと異なり、改質触媒を配置するスペースの必要がないために、水素製造性能評価の結果、容量的に約5分の1のコンパクト化が実現可能になった。

以上、本研究では、40 Nm<sup>3</sup>/h 級水素分離型リフォーマーシステムを開発し試験を実施した結果、要求性能である水素純度 99.999vol%で、水素製造効率 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を一体化した新しいコンセプトの水素分離膜-触媒一体化モジュールの開発を行い、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。こうした成果は、本分野の学術的かつ技術的進展に大きく寄与している。なお、本研究は原著論文をはじめ国内外での口頭発表などを通じて、学界や産業界からも先進的技術成果として高い評価を得ている。

本論文については、2017年8月10日に本学工学部総合研究棟講義室において、審査委員を含む多数の関係者の出席のもとに公聴会が開催され、研究内容に関する発表および質疑応答が行われた。その後、学位審査委員会が開催され、本論文の内容を詳細に検討した結果、論文内容の学術的意義、独創性、工学的実用性、および将来性を高く評価した。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文に値するものと認める。