

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	大規模水素製造に向けたニッケル支持型パラジウム銅複合水素透過膜の開発
Title(English)	Development of Porous Nickel-Supported Palladium-Copper Composite Hydrogen Permeable Membranes for Large-Scale Hydrogen Production
著者(和文)	篠田泰成
Author(English)	Yasunari Shinoda
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12456号, 授与年月日:2023年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:加藤 之貴,小林 能直,吉田 克己,原田 琢也,高須 大輝
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12456号, Conferred date:2023/3/26, 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	篠田 泰成		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	加藤 之貴	教授	審査員	高須 大輝	准教授
	審査員	小林 能直	教授			
		吉田 克己	准教授			
原田 琢也		准教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「大規模水素製造に向けた多孔質ニッケル支持型パラジウム銅複合水素透過膜の開発 (Development of Porous Nickel-Supported Palladium-Copper Composite Hydrogen Permeable Membranes for Large-Scale Hydrogen Production)」と題し、全6章から構成されている。

第1章「緒言」では、研究背景として高純度水素 (H_2) を得るためのパラジウム (Pd) 合金 H_2 透過膜の必要性と既存の複合膜の問題点を指摘し、本論文で開発した平板構造の金属支持型複合 H_2 透過膜の意義を述べている。脱炭素社会の実現に向けて、原子力エネルギーを用いた H_2 製造が有効である。普及している燃料改質 H_2 製造時には、生成した H_2 を混合ガスの中から分離精製が必要であり、Pd 合金膜を使用した膜分離技術が有効である。しかし、Pd 材料の高コストが普及の課題となっており、使用量の削減のために Pd 合金膜の薄膜化が求められる。本論文では、パラジウム銅 (PdCu) 合金材料に着目し、高価な Pd 使用量を削減するために薄膜化を検討し、在来の圧延膜に対して実用的な Pd 合金 H_2 透過膜の材料開発を目的としたと述べられている。

第2章「改良型逆ビルドアップ法の確立」では、本研究で開発した新規複合 H_2 透過膜の製膜方法が示されている。膜開発には、独自技術の逆ビルドアップ法を使用した。従来の逆ビルドアップ法の各製膜工程を改良し、多孔質ニッケル (Ni) 支持体の複合化、PdCu 層の $1 \mu m$ 未満までの薄膜化の技術を確認し製膜を実証している。在来圧延方法で得られる PdCu 膜 ($20 \mu m$ 以上) に比べて極めて薄い製膜を実現している。

第3章「薄膜化した複合膜の性能評価」では、新たに開発した $3.7 \mu m$ 、さらに $0.2 \mu m$ まで薄膜化した PdCu と多孔質 Ni 支持体の複合膜の H_2 透過・選択性能の評価結果について言及されている。開発した複合膜は、 $300^\circ C$ 付近で H_2 透過性と透過選択率が安定するのに対して、 $400^\circ C$ 付近では H_2 透過速度が経時劣化する現象が観察された。測定後の膜組成を分析の結果、支持体の Ni が PdCu 層まで拡散し、性能劣化が生じるメカニズムを明らかにした。安定した温度域では、在来圧延膜と比較して高い性能を示し、Pd 使用量の大幅な削減が示された。これより、本研究で開発した逆ビルドアップ法は、既存の製膜方法よりも経済的優位性を示し、Pd 合金層をさらに薄膜化することで必要な Pd 量を低減できる可能性を見出している。

第4章「複合膜の速度論解析」では、開発した複合膜の H_2 透過機構の解析を行った。評価には $1 \mu m$ の PdCu 層厚の複合膜を使用した。 H_2 圧力指数 n 値は1と決定され、 H_2 透過機構における PdCu 表面での H_2 分子の吸着および解離の反応が律速段階になっていることが結論づけられた。既往のアルミナ多孔体支持の膜厚同程度の Pd 合金複合膜に対して H_2 透過性と選択率を比較した。開発膜は既往膜に対して、同程度以上の高い H_2 透過・選択性能を示している。本論文で作製した PdCu 層厚 $1.0, 2.2, 3.7 \mu m$ 膜の透過性能はほぼ等しい値を示し、PdCu 表面での反応過程が律速であることを明らかにしている。

第5章「原子力を利用した H_2 製造への膜の応用」では、現在運転中の加圧水型軽水炉の出力熱 ($320^\circ C$ を想定) に着目し、メタノールを燃料として想定した水蒸気改質反応の熱源としての利用を検討した。開発透過膜を連結したプレート型非平衡改質器による H_2 製造システムを提案し、単位 H_2 量の分離に必要な所要 Pd 量が、開発透過膜は在来圧延膜の $1/28$ 程度となることを示した。原子炉の熱出力を利用した燃料改質 H_2 製造に対して開発透過膜は優れた経済的利点があることを実証している。

第6章「結論」では、各章で示された結果を統括し、本論文の結論が述べられている。これを要するに、本論文では、開発した新規の複合透過膜が、在来の圧延法で作製された Pd 合金膜に対して $1 \mu m$ 未満の厚みまでの薄膜化が実現でき、高価な Pd 材料の使用量を大幅に削減できることを示している。さらに、この複合膜の H_2 透過機構を明らかにし、既存の Pd 合金膜より優れた H_2 透過性能を実証している。以上のように、本論文では独自の製膜方法により経済的な Pd 合金複合膜を開発しており、その貢献は工学上及び工業上の発展に寄与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、東工大リサーチポータル(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。