



Title	Study on Hydrogen Isotope Separation using Fuel Cell and Electrolysis with Polymer Electrolyte Membrane [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	古澤, 宏一朗
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第15843号
Issue Date	2024-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/91936
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Koichiro_Furusawa_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 古澤 宏一朗

学 位 論 文 題 名

Study on Hydrogen Isotope Separation using Fuel Cell and Electrolysis with Polymer Electrolyte Membrane

(固体高分子膜を用いた燃料電池と水電解による水素同位体分離の研究)

脱炭素社会に向けた化石燃料の代替として、水素エネルギー社会が進められている。水素には、軽水素、重水素やトリチウムの同位体が存在する。これらは産業としての利用価値があり、重水素は半導体の長寿命化や高輝度な有機ディスプレイ製造に使用されている。トリチウムは、核融合炉での燃料としての利用が期待されている。これらの用途には、高純度な水素同位体が必要とされ、今後その分離・濃縮技術が重要である。

従来の水素同位体分離では、物性の違いを利用した方法が一般的である。これらは気相吸着、深冷蒸留法、電解法、水-水素化学交換法が挙げられる。多くの方法では分離効果が低く、そのため同位体の高純度化には多くの分離工程が必要となる。一方、電解法は既存の手法の中では最も分離係数が高いが、多量の電力を必要とする課題がある。そのため最近の分離方法は、電解法と水-水素化学交換法を併せた CECE 法 (Combined Electrolysis and Catalytic Exchange) が採用されている。この方法では、組み合わせによる分離の相乗効果が認められるが、ガス化のエネルギー消費量が高く、多くの白金を用いる触媒塔が必要となるため、大規模製造には不向きである。

本研究では、これらの課題を解決するために、触媒塔の代わりに燃料電池を用いた新たな方法を研究した。これは CEFC 法 (Combined Electrolysis and Fuel Cell) と呼び、燃料電池にて発電を行うことで電力回収を行い、電気エネルギーのリサイクルが可能となる。また燃料電池反応によっても同位体分離を行なえ、水電解と組み合わせることでさらなる分離係数の向上が予想される。CEFC 法の実用化に向けては、システムの基本構成を決める必要がある。燃料電池では供給ガスの加湿が燃料電池の性能や劣化に大きく影響を与えるため、加湿状態と同位体分離の関係を明らかにする必要がある。CECE 法の触媒塔と同様に、燃料電池の触媒も白金が使われている。そのため、電気化学的要因から分離が起ることに加え、軽水素との交換反応による化学的要因を検討する必要がある。交換反応は、水素ガスと水蒸気、水と水蒸気との間で起ることが報告されている。

そのため本研究では、軽水素と重水素を用いて燃料電池での分離過程における加湿の影響、さらに発電中の電池内部での気液比と分離係数の関係を調べた。電解法では、バッチ式による重水素の高濃縮および重水の回収を行い、電解消費量との関係から固体高分子形水電解の新たな分離法の適用を検証した。そこでは質量バランスの計算式を構築し、シミュレーションによって濃縮プロセスが予測できるかの検証を行った。

第 1 章では、水素同位体の用度や将来の利用方法について述べると共に、水素同位体分離・濃縮法の現状について調べ、新たな分離・濃縮法の重要性を説明した。その上で、本研究である電解法

と燃料電池を用いた CEFC 法について、その基本原理や将来への展望について述べ、本研究の目的を説明した。

第 2 章では、燃料電池を使った重水素分離において、各種パラメータ (水蒸気・酸素・発電) による影響を調べた。これにより、加湿されたガスを燃料電池のガス拡散電極に供給するだけで分離できることを明らかにした。発電を行なうと電気化学反応による分離効果が加わり、さらに分離係数が向上した。また重水素の質量バランスを計測し、反応によって生じた水の電解質膜内や排ガス中への含水量を求め、その重水濃度との関係を調べることで、重水素の移動量を調べた。発電により、ガス中に水蒸気として含まれる重水素量は多くなり、また電解質膜内にはほとんど重水素は濃縮されなかった。このことから、重水素分離には生成水と蒸気いずれも回収することが有効であることが分かった。

第 3 章では、燃料電池による加湿の影響を検討した。これは供給する水蒸気量の違いによる影響と、燃料電池内部での水分の気液比との関係を調べた。実験結果を検証するために、本章では平衡転換量を導入した。これにより交換反応による平衡定数を用いることで、各構成要素における転換量の計算モデルの構築を行い、その移動量を算出した。燃料電池へ供給する水分量が多くすることで、分離係数を向上させることが出来た。燃料電池内部で結露させるとき、分離係数が低下することも明らかにした。この現象は、本計算モデルとは一致しなかったが、これは結露による水蒸気量の減少と触媒表面積が液水によって覆われることで、水-水素交換反応が阻害していることが示唆された。

第 4 章では、重水製造を模擬し、固体高分子形水電解へ種々の重水素濃度の電解液を循環させ、電解消費量と重水素濃度との関係を調べた。また第 3 章と同様に、重水素の質量バランスによる計算モデルを構築し、実験値との比較検証を行った。いずれの電解液においても、実験結果と計算値が一致し、本濃縮法では最大 90% 以上の重水が得られた。電解液が高濃度になると、分離係数が徐々に低下する現象が確認された。これは、電解液を構成する重水素の割合に起因することを明らかにした。

第 5 章では、本論文を総括した。