



HOKKAIDO UNIVERSITY

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_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士(工学) 氏名 古澤 宏一郎

審査担当者 主査 准教授 松島 永佳
副査 教授 上田 幹人
副査 教授 渡辺 精一
副査 准教授 磯部 繁人

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。

本論文の第 1 章では、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) と提唱し、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が行なえ、水電解と組み合わせることでさらなる分離向上が予想される。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。

第 2 章では、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について研究を行った。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重水素を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。さらに重水素の質量バランスを計測し、反応によって生じた水蒸気・液滴や排ガス

中への含水量を求め、その重水素の量を調べることで、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、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、重水素分離が正しく行われていること、および燃料電池から排出される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った。最後に実験結果から、水-水素化学交換法の平衡定数を計算し、交換反応に対して実験値の位置づけを確認した。その結果、実験条件において平衡定数とほぼ同じ値になることがわかり、平衡状態に達していることが確認できた。

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、平衡転換量の考え方を導入した。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、重水素の転換量を算出した。実験結果では燃料電池へ供給する水分量を多くすることで、分離係数が向上することができた。ま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、本計算モデルで計算した転換量とは一致しなかった。これは結露による水蒸気量の減少と触媒表面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。また重水素の質量バランスによる計算モデルを新たに構築し、実験値との比較検証を行った。初期濃度を変化させて、濃縮実験を行った。いずれの電解液においても、時間経過において実験結果と計算値が一致した。本濃縮法では最大90%以上の重水が得られた。このとき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見出した。

第5章では、総括となっている。

これを要するに、本研究はCEFC法のシステム構築に必要な基礎的な現象を把握し、分離係数を向上させる条件と計算方法を確立させた。特に、CEFC法の実用化に向けてのシステム構築としての応用が期待される。これらの研究結果は、水素同位体分離におけるCEFC法の新たな知見を与えるものであり、材料工学の発展に貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。