

審査の結果の要旨

論文提出者名 池田 英人

工学修士 池田英人提出の論文は、「白金表面における水素の触媒燃焼に関する研究」と題し、8章から成っている。

水素の触媒燃焼に関する研究は、分散電源の一つとして注目されている溶融炭酸塩型燃料電池システムのリフォーマの触媒燃焼室を設計する上で不可欠なものであり、従来より多くの研究が行われてきた。このようなリフォーマの触媒燃焼室を設計するためには、触媒が高温で失活しないようにすることはもちろんのこと、起動時に確実に着火（第1触媒着火）し、また負荷変化時に消炎（第1触媒消炎）したり、気相反応（第2触媒着火）したりしないように配慮しなければならない。そのためには、定常時の触媒燃焼温度を予測するとともに、非定常現象である触媒着火および消炎特性も把握することが必要不可欠である。しかしながら、これまで触媒燃焼温度や触媒着火、消炎温度を定量的に予測した研究はなく、リフォーマの燃焼室の開発は実験的な試行錯誤で行われていた。そのため目標とする性能を得るまでに、多くの開発時間とコストが掛かっていた。

このような背景から、本研究ではこれらの課題を解決すべく、白金表面における水素と酸素の定常および非定常触媒燃焼特性を明らかにすることを目的としている。また、これらの知見を基に、溶融炭酸塩型燃料電池リフォーマの触媒燃焼室の反応、燃焼および伝熱挙動を数値計算により予測する方法を開発している。

これらの技術は、既に溶融炭酸塩型燃料電池リフォーマの触媒燃焼室の設計に採用され、触媒が失活しない燃焼温度になる条件の予測に成功している。また、起動時に確実に無反応モードから触媒反応モードへ遷移する条件の予測、および負荷変化時に触媒反応モードから気相反応モードへ遷移したり、無反応モードへ遷移したりしないような条件の予測可能な手法としてその効果が確認されている。

第1章は序論であり、本研究の背景を述べ、触媒燃焼の課題を検討し、本研究の意義とその目的を明確にしている。

第2章では、白金表面における水素と酸素の定常時の触媒燃焼温度の予測方法について述べている。触媒燃焼温度が高ければ、触媒表面反応速度を無限大と仮定することで十分な精度で触媒燃焼温度を予測できると結論付けている。一方、触媒燃焼温度が低くなると第1触媒消炎が生じ、その現象解析には有限の触媒表面反応速度を考慮する必要があることを指摘している。

第3章では、白金円板に垂直に水素-空気予混合気を流したよどみ流れ場における触媒燃焼実験より、総括触媒表面反応速度を求めている。また、有限の触媒表面反応速度を考慮した解析結

果と実験結果の比較を行い、総括触媒表面反応流束を Schefer の式のようにアレニウス型の総括触媒表面反応速度と触媒表面の水素濃度の積で表すことは適切ではないことを明らかにし、総括触媒表面反応流束に関する新たなモデルが必要であると指摘している。

第 4 章では、総括触媒表面反応流束のモデル化について述べている。触媒表面の活性サイトにおける水素と酸素の吸着、表面反応、離脱のプロセスを考慮した素反応モデルを用いた解析を行い、当量比が小さい場合、触媒表面の水素濃度が高いほど、すなわち相対的に酸素濃度が低いほど、総括触媒表面反応流束は増加することを示している。この結果から、総括触媒表面反応流束を、アレニウス型の総括触媒表面反応速度と触媒表面の水素濃度と酸素濃度の比との積で近似できると結論付けている。

第 5 章では、よどみ流れ場を用いた実験および解析により、無反応モードと触媒反応モードの間の遷移現象について調べている。実験結果との比較から、第 4 章で提案した総括触媒表面反応流束のモデルを用いた解析により、第 1 触媒着火温度および第 1 触媒消炎温度を予測することが可能であることを示している。

第 6 章では、総括触媒表面反応と気相の素反応を考慮した理論解析結果を、総括触媒表面反応のみの解析結果、および気相の素反応のみの解析結果と比較することで、第 2 触媒着火条件を明らかにするとともに、触媒反応モードと気相反応モードの間の遷移現象について詳細な検討を行っている。

第 7 章では第 2 章から第 6 章までに得られた知見を基に、各種触媒燃焼器、および熔融炭酸塩型燃料電池リフォーマを対象とした数値計算を行い、これら燃焼器における反応、燃焼および伝熱挙動の予測結果を示している。

第 8 章は結論であり、本研究において得られた結果を要約している。

以上、要するに、本論文は白金表面における水素と酸素の定常および非定常触媒燃焼特性を基礎的に明らかにするとともに、触媒燃焼温度や触媒着火、消炎温度を定量的に予測する手法を開発し、熔融炭酸塩型燃料電池リフォーマの設計に資する技術としてその有効性を実証したものであり、燃焼工学および化学工学上貢献するところが大きい。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。