

京都大学	博士 (工学)	氏名	頼 泰 弘
論文題目	Reaction Characteristics of Methanol Partial Oxidation Using Thermal Effects of a Porous Material (通気性固体の熱的効果を利用したメタノール部分酸化改質の反応特性)		
<p>(論文内容の要旨)</p> <p>本論文は、液体燃料を用いた数 kW 級小型部分酸化改質器への応用展開を念頭に、メタノール部分酸化改質反応の安定化および水素生成の高効率化を図ることを目的として、反応容器内に通気性固体を適用した場合の伝熱および反応特性、さらにその反応制御手法に関する実験的検討を行ったものであり、6章から成っている。</p> <p>第1章は序論であり、省エネルギー社会における水素エネルギーの位置付けについて述べている。水素供給の社会基盤整備に関して、水素製造・貯蔵・運搬技術のそれぞれの特徴および水素製造手法のひとつである燃料改質の優位性や克服すべき課題について論述している。さらに改質反応の安定化に適用可能な手法に関して燃焼工学的な観点から述べ、それらの小型改質器への適用可能性について述べている。</p> <p>第2章は、メタノールの改質原理について詳述している。まず既往研究について調査し、メタノール改質の主反応である水蒸気改質、部分酸化改質、オートサーマル改質のそれぞれの特徴や知見を調査した上で、反応に必要な触媒、反応容器の特徴や適当な出力範囲などについて述べ、それらに適したシステム、利用用途の違いについて説明している。一方、燃料改質器を利用して水素エネルギーシステムを構築する際に、燃料改質器に要求される性能や改質ガス成分について、燃料改質器から供給される水素含有ガスを燃料として燃料電池を駆動させる発電システムを模擬し、メタノールを内燃機関で直接燃焼させて発電する場合と比較してシステム全体の効率にどの程度優位性があるかを検討している。これによって小規模なシステムほど燃料改質器を利用したシステムに優位性があることを示している。</p> <p>第3章は、通気性固体としてセラミックハニカムを利用しメタノール部分酸化改質反応を安定化させた場合の熱流動特性について、小型改質反応器内部の詳細な温度測定、改質ガス分析、化学平衡計算等の結果に基づき検討している。化学平衡計算によって得られたガス組成は実験結果と傾向が一致し、ハニカムの熱的効果によって安定した反応が幅広い当量比条件において維持可能であることを示している。さらに、改質効率に寄与する要因としては、燃焼効率に相当するメタノール転換率と改質ガス中の水素原子含有物質に占める水素の比率である水素選択生成率の二つの因子が重要となり、これらが当量比に対してトレードオフの関係にあることを明らかにしている。この関係から、部分酸化改質反応は燃料過濃条件において効率的に進行し、本改質反応器においては量論当量比である3.0よりも燃料過濃である当量比3.5付近で水素生成効率が最適となることを示している。</p>			

第 4 章は、ハニカム下流端に部分酸化改質反応を安定化させた場合の火炎帯とハニカム固相との熱的相互作用が改質効率に与える影響について検討している。改質器内部の詳細なガス温度分布および火炎の可視化によって、当量比一定条件下において出力（本章では燃料流量に相当する）に応じて火炎位置および形状が変化することを示し、その形状を平坦火炎・円錐火炎・非軸対称火炎の 3 種類に分類して考察している。すなわち、改質効率・安定性の観点から円錐火炎を形成することが望ましいこと、高出力条件では火炎が非軸対称化した後に吹き飛び反応が維持し得なくなること、一方で低出力条件において火炎がハニカム下流端に付着して平坦火炎を形成する場合には、ハニカム固相表面からのふく射およびハニカム固相を通じた熱伝導の両者によるエネルギー損失によって、メタノール転換率が減少することを示している。以上のことからハニカム固相と火炎の熱的相互作用が改質効率に強い影響を及ぼすことを明らかにしている。

第 5 章は、通気性固体のふく射変換体としての特徴を利用して、部分酸化改質反応における火炎形成領域の下流側にハニカムを追加することで、改質ガスの持つ顕熱の一部をふく射エネルギーとして効果的に再生し、改質効率の改善を試みている。追加したハニカムが改質ガスの通過により高温化することで、上・下流側の 2 つのハニカム間でふく射エネルギー交換が行われ、予混合気の予熱効果が促進されることを示した。その結果、より幅広い出力条件において安定した火炎が形成されることを明らかにしている。また、エネルギー再生の効果は反応器側壁近傍においてより顕著であることを示すとともに、ハニカム間の距離に応じてエネルギー再生量が変化し、反応位置を制御できる可能性にも言及している。一方で、低・高出力条件において火炎が上・下流側それぞれのハニカムの近傍に位置する場合には、それぞれのハニカムによる消炎効果の影響で改質性能が低下することを明らかにしている。このように、通気性固体としてハニカムを利用し、ふく射エネルギー再生を実現する場合は、火炎とハニカムとの相対位置が改質性能を決定するため、適切な火炎と 2 つのハニカムの相対位置を考慮し、設計する必要があることを示している。

最後に、第 6 章で上述の結果を取り纏めると共に、それらを総括し、今後の研究を展望して本論文の結論としている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、数 kW 級の小規模システム用燃料改質器への応用展開を念頭に、通気性固体としてセラミックハニカムを用いてメタノール部分酸化改質反応を安定化させ制御する場合の、熱および反応特性を明らかにするために行った実験的研究の成果についてまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1. ハニカムを利用した小型燃料改質器において、ハニカムの熱的效果によってメタノールの燃焼限界を超える幅広い当量比条件下で反応が維持されるが、水素生成効率はメタノール転換率と水素選択生成率の双方の影響を受けるため、量論当量比よりもやや燃料過濃条件で改質効率は最も高くなる。
2. 出力条件に応じて火炎の位置および形状が変化し、その形状は3種類に分類できるが、低当量比条件および低出力条件では火炎がハニカム出口に付着し、改質性能が急激に低下する。これはハニカムの消炎効果によるものであり、ハニカムと火炎との相対位置は改質性能に強く影響を及ぼす。
3. ハニカムの消炎効果による改質性能の低下は、ハニカム固相を通じた熱伝導およびハニカム固相表面から放射されるふく射によるエネルギー損失が主要因である。
4. 火炎形成領域の下流側にハニカムを追加し、ふく射変換体として利用することにより改質ガスの持つ顕熱の一部が上流側に再生されるため、予混合気の予熱効果が促進される。また、追加するハニカムの主流方向位置によってエネルギー再生量および反応位置を制御できる可能性を示した。
5. ハニカムを利用してエネルギー再生を実現する場合は、火炎とハニカムの相対位置が改質性能を決定するため、火炎とハニカムの適切な相対位置を考慮し、設計することが必要である。

以上、本論文は液体燃料の燃料改質反応に通気性固体としてセラミックハニカムを適用した場合の熱および反応特性を体系的に明らかにし、小型燃料改質器設計・技術開発における重要な指針を示しており、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 25 年 2 月 22 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。