

公開用

# 終了報告書

S I P (戦略的イノベーション創造プログラム)

課題名「エネルギーキャリア」

研究開発テーマ名「プロセス基盤技術」

H26 年度～H27 年度

研究責任者：公益財団法人地球環境産業技術研究機構  
主席研究員 伊藤 直次

## 目次

1. 本研究の目的	1
2. 研究実施体制	1
3. 研究成果	2
3-1. 無機・金属系水素分離膜の研究開発	
3-2. メンブレンリアクターの研究開発	
3-3. 細孔径評価技術の検討	
3-4. 膜・メンブレンリアクターのプロセス検討	
4. 外部発表実績	3
5. 特許出願実績	3
6. 参考文献	3

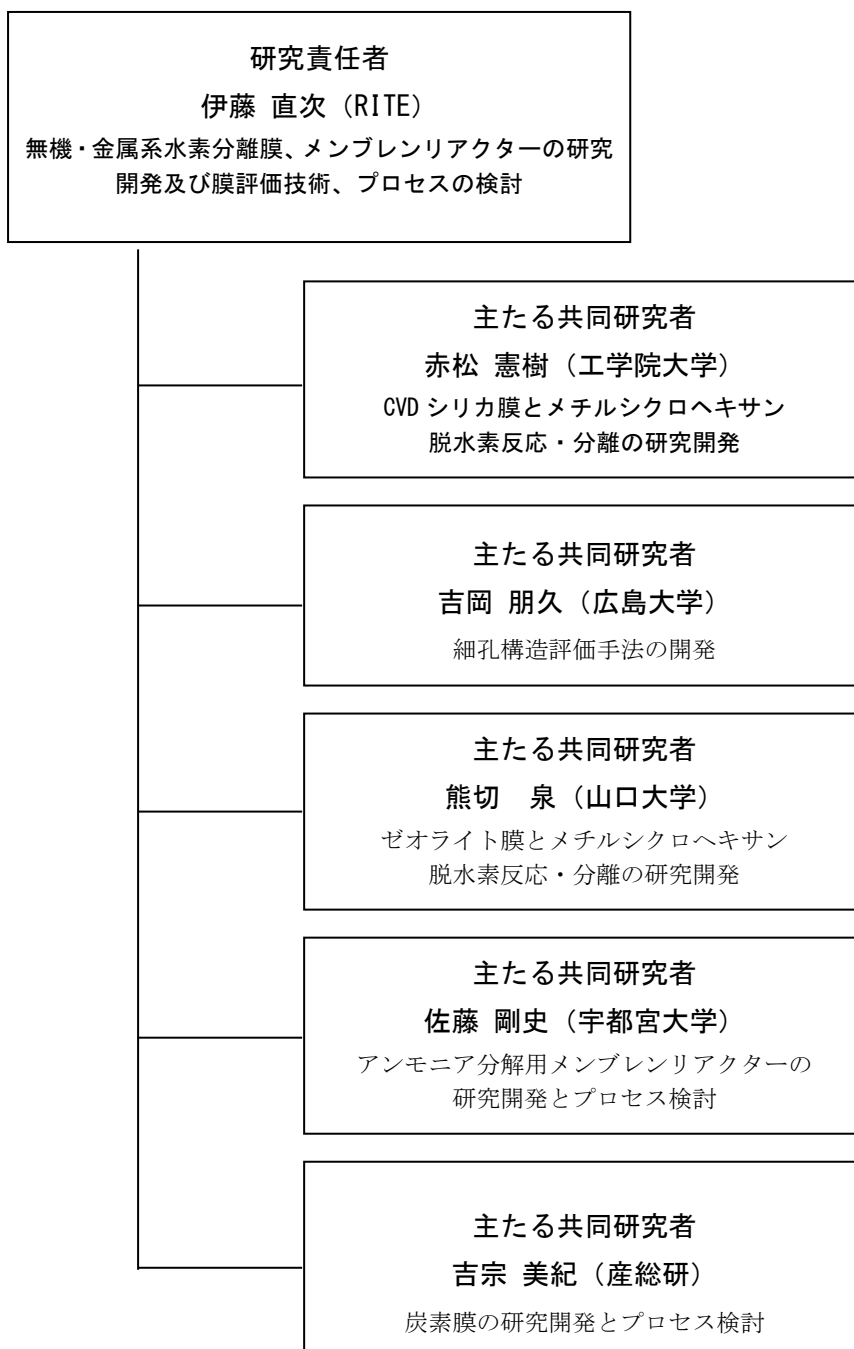
### 別添：各研究機関終了報告書

- ・公益財団法人 地球環境産業技術研究機構
- ・工学院大学
- ・広島大学
- ・山口大学
- ・宇都宮大学
- ・産業技術総合研究所

## 1. 本研究の目的

本チームは、FCV 仕様の水素供給に資する高度水素分離・精製および反応分離・精製プロセスの実現のために、その要素技術である無機・金属系水素分離膜、メンブレンリアクターの各シーズ技術の革新、及び目標達成のための分離および反応プロセスの構成と設計を行う。その中核をなす水素分離膜として、サブナノ細孔を利用して水素をふるい分ける無機多孔質膜と解離溶解して透過分離する金属パラジウム膜に着目し、前者では細孔制御と細孔径評価技術、後者では細孔内充填型薄膜の形成などの課題の解決に取り組む。それらの膜を組込んだメンブレンリアクターにおいては、反応の低温化と装置のコンパクト化とともに水素精製の同時実現を目指して、最適化された反応操作法、反応器設計に取り組む。

## 2. 研究実施体制



### 3. 研究成果

#### 3-1. 無機・金属系水素分離膜の研究開発

①シリカ膜については、DMDPS 由来シリカ膜について製膜条件を検討した結果、マイルストーンを大きく上回って達成した。また、Ph3-Si-OMe をプレカーサーとして新たに作製した膜についてもマイルストーンを達成した。

②ゼオライト膜については、ゼオライトの製膜条件を最適化することにより、基準ガスに対して H26 年度および H27 年度のマイルストーン目標を達成した。有機構造規定剤を用いず水熱合成後の焼成を必要としない低コスト化が期待できる合成法を開発した。さらに種結晶を用いず支持体表面での核発生を利用した細孔閉塞法において優れた透過性を示す膜を得た。

③パラジウム膜については、表面に保護層を有する細孔内充填型パラジウム膜の作製工程を見直すことで、薄膜かつ緻密な膜の作製に成功した。模擬ガス H26 年度および H27 年度のマイルストーン目標を達成した。また、従来型よりも低コストで同等の性能を得られることが明らかとなり、同パラジウム使用量では細孔内充填型は従来型よりも高い耐水素脆性を示すことがわかった。

④炭素膜については、製造条件の最適化によって、基準ガスを用いた評価でマイルストーンを達成した。また、前駆体への熱分解ポリマーの導入等により水素パーミアンス向上に成功した。

#### 3-2. メンブレンリアクターの研究開発

①数種の Ru 系触媒について最良の触媒調製条件を見出し、NH3 低温分解触媒候補として選定した。また、400°C で、水素分離による速度加速効果を実証し、マイルストーンを達成した。

#### 3-3. 細孔径評価技術の検討

①多成分ガス型細孔径分布評価装置の製作を完了するとともに、2 成分系混合ガスの実験で濃度分極の影響を回避する条件を見出した。また、拡張 NKP 法の構築については、細孔径分布が存在する多孔性アモルファスシリカ膜、産総研が作製した炭素膜、RITE で作製されたゼオライト (CHA) 膜、CVD シリカ膜の細孔径を評価し、H2 の透過に有効な微小な細孔と、N2 や CH4、SF6 がわずかに漏れるやや大きな細孔の存在をこの解析法により確認することで各機関の膜開発に貢献した。これら解析法の妥当性も分子シミュレーションを用いた検討により明らかとしておりマイルストーンを達成した。

#### 3-4. 膜・メンブレンリアクターのプロセス検討

①MCH からの脱水素については、開発中の炭素膜、ゼオライト膜、シリカ膜の現状性能を基に設計試算を行った。NH3 分解のメンブレンリアクターについては、解析モデルを作成し、膜反応器のみの場合や、膜反応器＋分離器の 2 段型について検討した。いずれもマイルストーンを達成している。

#### 4. 外部発表実績

(単位：件数)

学会発表	講演	査読付論文	査読なし論文	取材	合計
15	2	6	1	2	26

#### 5. 特許出願実績

	出願番号	発明の名称	出願年月日	出願人
1	特願2015-080470	アンモニア分解触媒、アンモニア分解触媒の製造方法、水素の製造方法及び水素の製造装置	H27.4.9	宇都宮大学
2	特願2015-169366	細孔径評価装置および細孔径評価方法	H27.8.28	広島大学、地球環境産業技術研究機構
3	特願2015-219518	結晶性シリカ膜複合体およびその製造方法、並びに流体分離方法	H27.11.9	RITE
4	特願2016-256291	ゼオライト膜複合体およびその製造方法、並びにガス分離方法	H27.12.28	RITE
5	P C T / J P 2016/004603	結晶性シリカ膜複合体およびその製造方法、並びに流体分離方法	H28.10.17	RITE
6	P C T / J P 2016/004604	ゼオライト膜複合体およびその製造方法、並びにガス分離方法	H28.10.17	RITE

#### 6. 参考文献

なし